

# LiTaO<sub>3</sub>オプトエレクトロニクス単結晶材料の超音波 マイクロスペクトロスコピー

著者	櫛引 淳一
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/41427">http://hdl.handle.net/10097/41427</a>

平成7年度～平成9年度文部省科学研究費補助金  
〔基盤研究(A)(1)〕研究成果報告書

LiTaO<sub>3</sub>オプトエレクトロニクス単結晶材料の  
超音波マイクロスペクトロスコピー

(課題番号：07555408)

平成10年3月

研究代表者： 櫛 引 淳 一  
(東北大学大学院工学研究科教授)



平成7～9年度文部省科学研究費補助金〔基盤研究(A)(1)〕研究成果報告書

(1) 課題番号：07555408

(2) 研究課題：LiTaO<sub>3</sub>オプトエレクトロニクス単結晶材料の  
超音波マイクロスペクトロスコピー

(3) 研究組織：

研究代表者：櫛引 淳一（東北大学大学院工学研究科教授）

研究分担者：山本 和久（松下電器株式会社

開発本部材料デバイス研究所主任技師）

研究分担者：佐橋 家隆（株式会社山寿セラミックス晶研事業部開発部長）

(4) 研究経費：平成7年度 6,700千円

平成8年度 3,900千円

平成9年度 1,000千円

計 11,600千円

東北大学図書



00010132557

附属図書館

## (5) 研究目的

近年、光通信技術と密接な関係にあるオプトエレクトロニクスの発展は目覚ましく、光制御あるいは光応用諸技術を支える電子材料の中で、 $\text{LiNbO}_3$ 、 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の果たす役割は大きい。これら結晶の持つ圧電効果、電気光学効果、音響光学効果、非線形光学効果を利用した高性能光導波路型デバイスの研究・開発が活発になされ、一部実用化が進められている。デバイスの究極的性能はその材料の品質によって左右され、デバイス作製プロセスの制御に依存する。現在、所望のデバイスを実現するための最重要課題は、光学的品質に優れ均質な大口径単結晶製造法の開発や、それらの材料の基板間および基板内の電氣的・物理的諸特性の均一化であり、実用化に向けての将来的最重要課題は、マスプロ用デバイス作製プロセスの開発であろう。そのためには材料とプロセスの研究開発において高精度の特性解析・評価を行う必要がある。

本研究では、本代表研究者らが発明・開発した「超音波マイクロスペクトロスコピー (UMS) 技術」を光学用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の開発とデバイス作製プロセスの一つであるプロトン交換、分極反転プロセスの問題に適用する。 $\text{LiTaO}_3$ は、 $\text{LiNbO}_3$ に比べて融点をはるかに高く、サブグレインが発生するなど光学品質上問題が山積している。ここでは、次の3研究項目にUMS技術を適用し、この材料と光デバイス作製プロセスの解析法という”辞書作り”を行い、新しいオプトエレクトロニクス・デバイスの基礎データを提供するものである。

- (1) 本手法による $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の高精度化学組成比分析法の確立。
- (2) 光学用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の評価法の開発。
- (3) オプトエレクトロニクス・デバイスで用いられているプロトン交換層や分極反転層／境界の解析法の開発と将来のマスプロ・作製プロセスの新しい評価法の提案。

## **(6) 研究成果**

### **1. UMS システムの絶対精度と校正法**

#### **A Method for Calibrating the Line-Focus-Beam Acoustic Microscopy System**

##### **ABSTRACT**

Absolute accuracy of the line-focus-beam (LFB) acoustic microscopy system is investigated for measurements of the leaky surface acoustic wave (LSAW) velocity and attenuation, and a method of system calibration is proposed. In order to discuss the accuracy, it is necessary to introduce a standard specimen whose bulk acoustic properties, (e.g., the independent elastic constants and density) are measured with high accuracy. Single crystal substrates of gadolinium gallium garnet (GGG) are taken as standard specimens. The LSAW propagation characteristics are measured and compared with the calculated results using the measured bulk acoustic properties. Calibration is demonstrated for the system using two LFB acoustic lens devices with a cylindrical concave surface of 1-mm radius in the frequency range 100 to 300 MHz.

## I. INTRODUCTION

Line-focus-beam acoustic microscopy [1] has become recognized as a unique and useful method of quantitative material characterization [1]-[18]. Characterization is made by measuring the propagation characteristics, (e.g., velocity and attenuation) of LSAWs excited on the boundary between the specimen and the water coupling liquid through  $V(z)$  curve analysis. Measurement accuracy of the LFB system has been studied persistently [1], [19], [20], since the measurement principle and a prototype system were established in order to develop the potential practical applications in materials science. Mechanical precision and temperature stability have been serious problems for accurate measurements in this technology.

Accuracy must be considered in the two categories of relative and absolute accuracy. The typical system, developed for two-dimensional (75 mm X 75 mm) inspection, has attained the relative accuracy of LSAW velocity measurements better than  $\pm 0.005\%$ , at a chosen point of a specimen, and  $\pm 0.01\%$  over the entire scanning area, by establishing the measurement procedures [19]. The system has been satisfactorily applied to resolve scientific and industrial problems of ferroelectric single crystals of  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$  for SAW devices and for optoelectronic devices [14]-[17]. Absolute accuracy of measurement of velocity and attenuation for relevant leaky waves was examined previously [1] by comparing the measured results, for a variety of isotropic and anisotropic materials, with calculations using physical constants published in the literature. Although it was at the early stages of these developments, this study suggested that the physical constants of some materials, for example  $\text{LiNbO}_3$  crystals, used for the calculations were considerably different from those of the specimens actually employed for the studies. This has been confirmed by detailed investigations of the congruent chemical composition of  $\text{LiNbO}_3$  using LFB acoustic microscopy [15]. Therefore, it is necessary to employ well-

characterized specimens, with their measured acoustic properties when discussing absolute measurement accuracy. Absolute accuracy is, at present, the most important research topic, from the technological point of view, for such applications as absolute measurement of velocity and attenuation, and as determinations of the elastic constants of bulk and thin-film materials [3], [4], [10]-[13]. Also, it is necessary to develop a method of system calibration because different measured values can result from different systems/devices operating at the same frequency. A method using standard specimens has been proposed and a demonstration with a synthetic silica glass has been made for the first time [20]. This paper presents the details for discussing absolute accuracy of the LFB acoustic microscopy system, using GGG single crystal substrates as the standard specimens for the frequency range from 100 to 300 MHz.

## II. SYSTEM CALIBRATION AND STANDARD SPECIMEN

Fig. 1 illustrates schematically the concept of a calibration method for the LFB system for studying a nonpiezoelectric standard specimen having the independent elastic stiffness constants  $c_{ij}$  and density  $\rho$ . The theoretical values of the LSAW velocity  $V_{\text{LSAW}}$  and normalized attenuation factor  $\alpha_{\text{LSAW}}$ , calculated from the actually measured bulk elastic constants and density, provide a standard for calibration and are compared with the experimental values obtained by the LFB acoustic microscopy system.

In principle, all the materials, including nonpiezoelectric and piezoelectric materials could be appropriate for the standard specimen if all the physical constants necessary for the theoretical calculations of the LSAW characteristics can be determined by accurate measurements. The following requirements, however, should be applied for selecting the standard specimen: nonpiezoelectric homogeneous materials with a small number of independent elastic constants and negligibly small acoustic loss at the higher



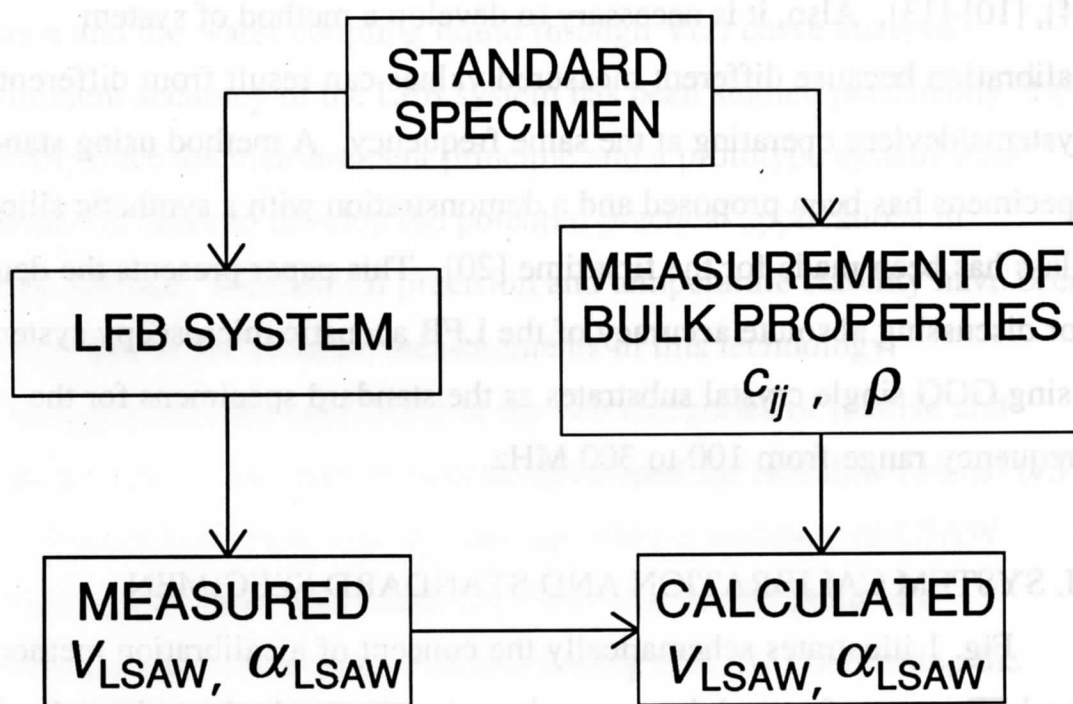


Fig. 1. A concept of calibration of the LFB system.

frequencies at which characterization by LFB acoustic microscopy is performed; materials with moderate LSAW velocity and attenuation to produce many continuous oscillations in the  $V(z)$  curve over the entire defocus region used for  $V(z)$  curve analysis.

GGG single crystal, which belongs to the cubic system and has three independent elastic constants,  $c_{11}$ ,  $c_{12}$ , and  $c_{44}$ , is a most suitable material for the complete calibration, from our experimental experience. It is expected that the system calibration can be made with this standard specimen at any frequencies where the LFB system can be applied to material characterization. Here, GGG single crystal substrates with two basic crystalline surfaces of (100) and (111), produced by Shin-Etsu Chemical Co., Tokyo, Japan, were taken for the demonstration. The approximately 3-mm thick specimens were prepared with sufficient homogeneity and optically polished surfaces. The specimen surfaces were examined by X-ray diffraction analysis and were evaluated to be within less than  $0.1^\circ$  to the desired crystalline surfaces.

### III. MEASUREMENTS OF BULK ACOUSTIC PROPERTIES

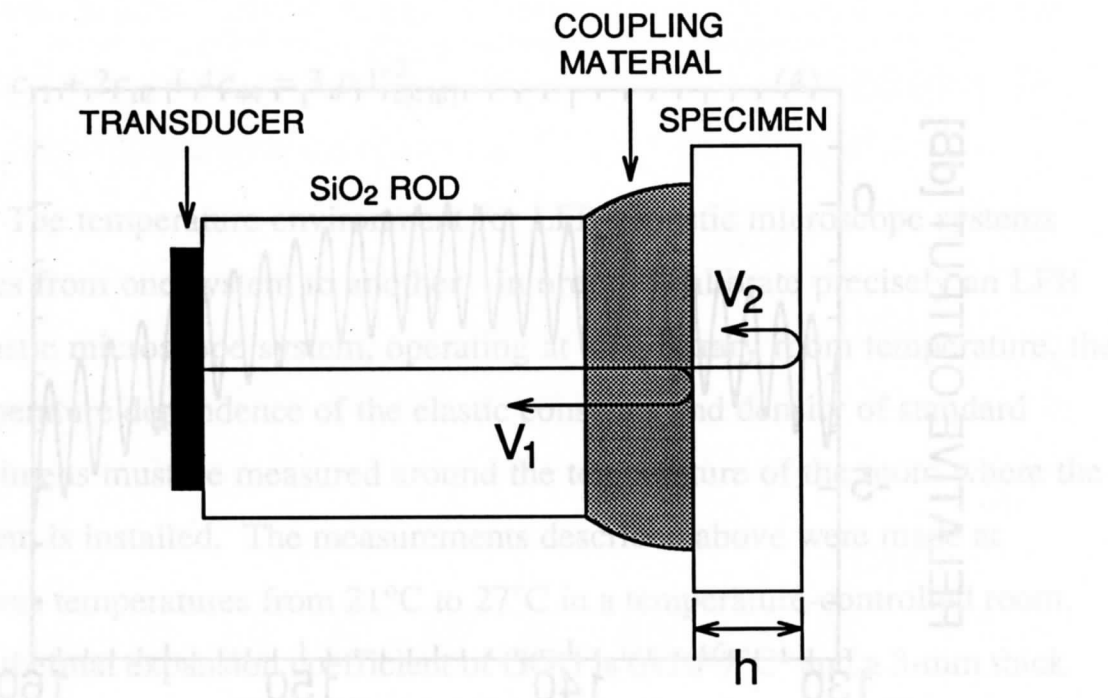
Measurements of the bulk acoustic properties were made first. Longitudinal and shear wave velocities were measured by the pulse interference method using a radio frequency (RF) tone burst signal [21], while densities were measured by a conventional method based on the Archimedes principle by weighing the specimens both in air and in distilled water. Two plane wave ultrasonic devices for velocity measurements were prepared, with a ZnO film transducer for longitudinal waves and an X-cut  $\text{LiNbO}_3$  transducer for shear waves, on cylindrical buffer rods of synthetic silica ( $\text{SiO}_2$ ) glass (T-4040, Toshiba Ceramics Co., Tokyo, Japan). Velocity measurements were carried out around 150 MHz for the longitudinal waves

and around 100 MHz for the shear waves, as shown schematically in Fig. 2, using the bulk ultrasonic spectroscopy system [21]. RF pulsed plane waves emitted from the devices are incident on a specimen through a couplant. Partial reflection and transmission occur at the interface between couplant and specimen, and transmitted waves are reflected perfectly at the back surface. Two echoes  $V_1$  and  $V_2$  (see Fig. 2) reflected from the front and back surfaces of the specimen, respectively, were used for measurements. The double-pulse method [22] was used so that the two echoes,  $V_1$  and  $V_2$ , could overlap and interfere. By gating out the interfered signal and sweeping the ultrasonic frequency, a series of interference maxima and minima are recorded (Fig. 3). The frequency interval  $\Delta f$  is related to the phase velocity  $V$  for the specimen thickness  $h$  as follows:

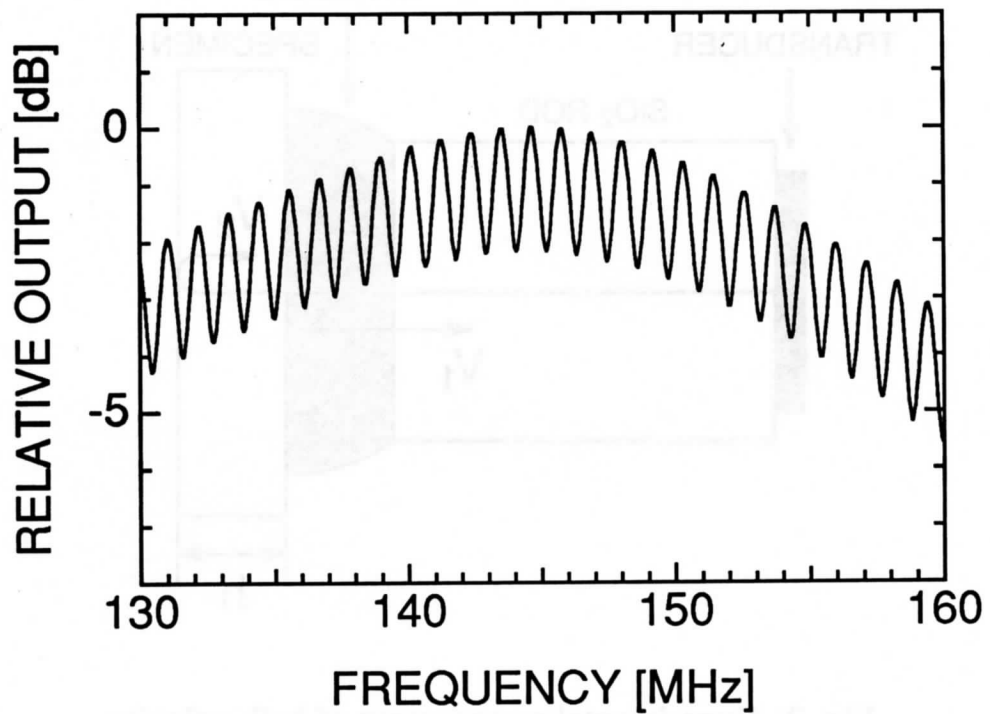
$$\Delta f = V/(2h) . \quad (1)$$

The thickness was measured by a digital length gauging system with an error of  $\pm 0.1 \mu\text{m}$ . In our measurements, the significant figures of determined velocity values are five digits, which is mainly dominated by the accuracy in thickness measurement. Coupling materials are distilled water for longitudinal waves and a thin layer of bonding material salol (phenyl salicylate) for shear waves. For shear wave velocity measurements, corrections for phase shifts at the salol bond must be made for accurate determination of shear wave velocities. More detailed description concerned with the accurate measurements of bulk wave velocities and density will be reported elsewhere [23].

The three independent elastic constants,  $c_{11}$ ,  $c_{12}$ , and  $c_{44}$ , of GGG crystal can be determined with high accuracy by measuring the velocities of [100]-propagating longitudinal waves,  $V_{l[100]}$ , and [100]-propagating shear waves,  $V_{s[100]}$ , for the (100) GGG substrate and of [111]-propagating



**Fig. 2. Experimental arrangement of bulk velocity measurements by the pulse interference method.**



**Fig. 3. Frequency response of interference output in longitudinal velocity measurement for a (100) GGG specimen at 23.36°C. The specimen thickness is 2800.6  $\mu\text{m}$ .**



longitudinal waves,  $V_{\ell[111]}$ , for the (111) GGG substrate and the density  $\rho$ , with the following equations:

$$c_{11} = \rho V_{\ell[100]}^2, \quad (2)$$

$$c_{44} = \rho V_{s[100]}^2, \quad (3)$$

$$c_{11} + 2c_{12} + 4c_{44} = 3 \rho V_{\ell[111]}^2. \quad (4)$$

The temperature environment for LFB acoustic microscope systems varies from one system to another. In order to calibrate precisely an LFB acoustic microscope system, operating at an arbitrary room temperature, the temperature dependence of the elastic constants and density of standard specimens must be measured around the temperature of the room where the system is installed. The measurements described above were made at various temperatures from 21°C to 27°C in a temperature-controlled room. The thermal expansion coefficient of GGG is  $6 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}^1$  and a 3-mm thick specimen becomes 0.072  $\mu\text{m}$  thicker as the temperature rises by 4°C. Because this value is smaller than the measurement resolution of the digital length gauging system ( $\pm 0.1 \mu\text{m}$ ), the thicknesses of the specimens were measured only at a fixed room temperature around 23°C. In each measurement, the temperature around the specimens was also measured with a calibrated copper-constantan thermocouple.

Fig. 3 shows the typical frequency response of the interference output in the longitudinal velocity measurement for a specimen of (100) GGG. From this waveform, we can determine  $\Delta f = 1.13454 \text{ MHz}$  through our procedure of waveform analysis. Fig. 4 shows the temperature dependence

<sup>1</sup>Technical Data, Shin-Etsu Chemical Co., Tokyo, Japan.

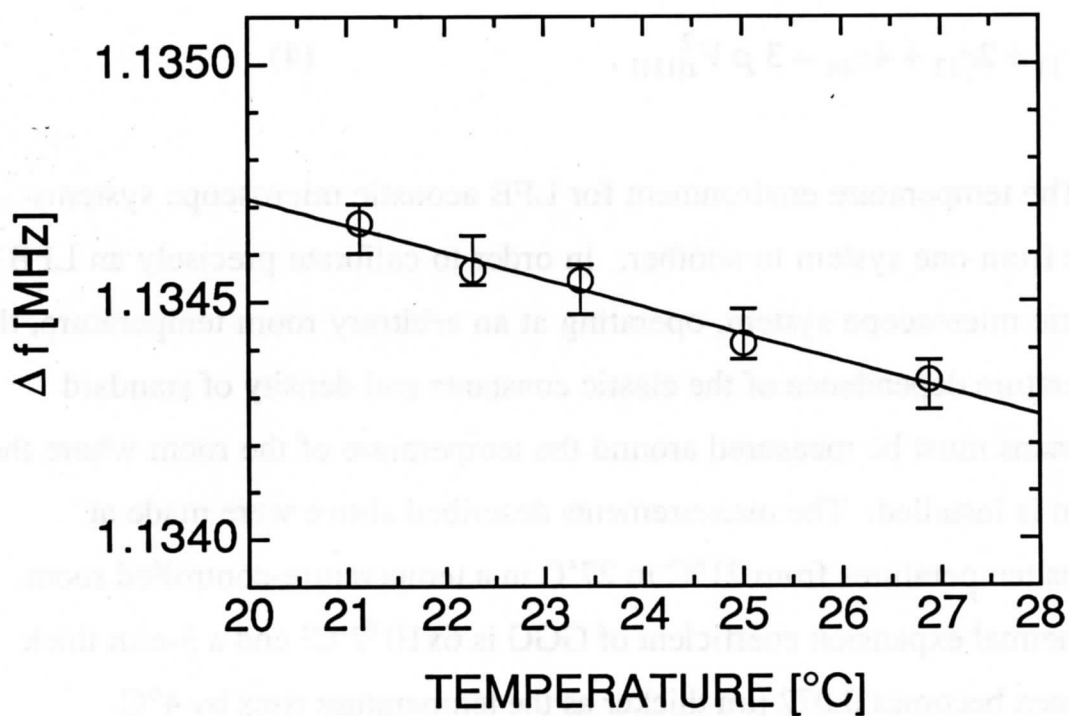


Fig. 4. Temperature dependence of frequency interval  $\Delta f$  for [100]-propagating longitudinal waves on a (100) GGG specimen. The specimen thickness is 2800.6  $\mu\text{m}$ .

of the frequency interval  $\Delta f$  of longitudinal waves for the (100) GGG specimen. Open circles denote the measured values, and bars the measurement errors.  $\Delta f$  decreases as the temperature rises. The slope was determined to be  $-0.000057 \text{ MHz/}^\circ\text{C}$  by the method of least squares. The thickness of the specimen was  $2800.6 \text{ }\mu\text{m}$ . From these measured results, the longitudinal velocity and temperature dependence at  $23^\circ\text{C}$  are determined to be  $V_l=6354.82 \text{ m/s}$  and  $-0.32 \text{ m/s/}^\circ\text{C}$ , respectively. The densities were also measured for the (100) and (111) GGG specimens as given in Fig. 5. The density and temperature dependence at  $23^\circ\text{C}$  are  $7097.1 \text{ kg/m}^3$  and  $-0.14 \text{ kg/m}^3/^\circ\text{C}$ , respectively. The bulk acoustic properties of the GGG specimens at  $23^\circ\text{C}$  are listed in Table I, along with measurement errors in parentheses. Table II gives the elastic constants determined by (2)-(4) using the velocities and density in Table I. The temperature dependences of the elastic constants were found to be negative, just the same as those of velocity and density.

#### IV. LSAW PROPAGATION CHARACTERISTICS

Measurements of  $V(z)$  curves for the (100) and (111) GGG standard specimens are carried out in order to calibrate the LFB system using two LFB ultrasonic devices designed for 225-MHz operation, which are described in detail in the literature [1]. The devices have the different ZnO-film transducer sizes of  $1.73 \text{ mm} \times 1.73 \text{ mm}$  (No. 1) and  $1.50 \text{ mm} \times 1.73 \text{ mm}$  (No. 2) with the altered transducer widths of 1.73 and 1.50 mm along the focused axis, formed on the flat ends of the acoustic cylindrical lenses with the following dimensions: the cylindrical concave surface of 1-mm radius with an aperture half-angle of  $60^\circ$  and the distance of 12 mm between the transducer plane and the top surface of the lens. On the cylindrical concave surface, a quarter-wavelength thick chalcogenide-glass film is fabricated as an acoustic antireflection coating layer between sapphire and

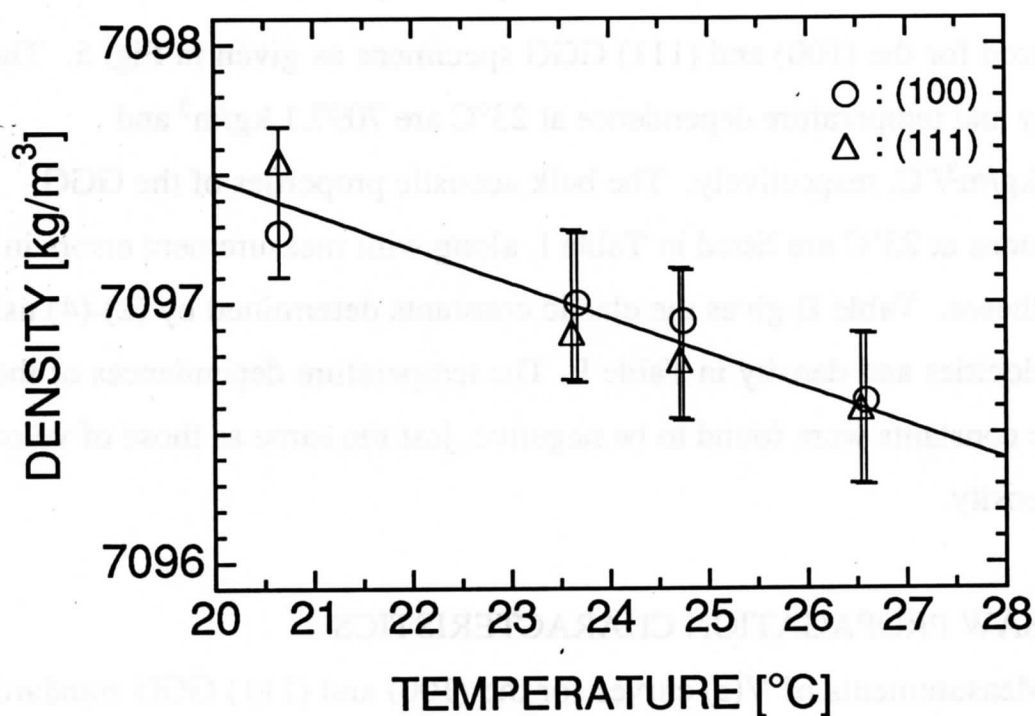


Fig. 5. Temperature dependence of density for (100) and (111) GGG specimens.

Table I. Bulk acoustic properties of GGG at 23°C.

Specimen	Thickness $h$ ( $\mu\text{m}$ )	Mode	Velocity		Density	
			Absolute Value	Temp. Coeff.	Absolute Value	Temp. Coeff.
			$V$ (m/s)	$\alpha_V (\times 10^{-5}/^\circ\text{C})$	$\rho$ ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )	$\alpha_\rho (\times 10^{-5}/^\circ\text{C})$
(100)	2800.6 ( $\pm 0.1$ )	Longitudinal	6354.8 ( $\pm 0.6$ )	- 5.0		
		Shear	3566.7 ( $\pm 0.4$ )	- 4.6	7097.1 ( $\pm 0.4$ )	- 1.9
(111)	2655.1 ( $\pm 0.1$ )	Longitudinal	6427.2 ( $\pm 0.5$ )	- 4.9		

$$V(T^\circ\text{C}) = V(23^\circ\text{C}) \times (1 + \alpha_V \Delta T) \text{ m/s}, \rho(T^\circ\text{C}) = \rho(23^\circ\text{C}) \times (1 + \alpha_\rho \Delta T) \text{ kg/m}^3, \Delta T = T - 23^\circ\text{C}.$$



Table II. Elastic constants of GGG at 23°C.

Elastic Constant ( $\times 10^{11}$ N/m <sup>2</sup> )	Temp. Coeff. ( $\times 10^{-4}/^{\circ}\text{C}$ )
$c_{11}$ 2.8661 ( $\pm 0.0007$ )	- 1.2
$c_{12}$ 1.1588 ( $\pm 0.0014$ )	- 1.3
$c_{44}$ 0.9029 ( $\pm 0.0003$ )	- 1.1

$$c(T^{\circ}\text{C}) = c(23^{\circ}\text{C}) \times (1 + \alpha_c \Delta T) \text{ N/m}^2,$$

$$\Delta T = T - 23^{\circ}\text{C}.$$

water. The type No. 1 transducers were used at the early stages of the development, and the type No. 2 transducers have been mainly employed around 225 MHz for practical measurements since 1986.

First, angular dependences of LSAW propagation characteristics were measured near the center of each specimen in  $1^\circ$  steps over  $200^\circ$ . Fig. 6 shows the typical  $V(z)$  curves measured with the two devices on the (111) GGG specimen for  $[\bar{1}\bar{1}2]$  propagation at 225 MHz. Significantly different  $V(z)$  curves in shape were recorded in Fig. 6(a) by the No. 1 device and in Fig. 6(b) by the No. 2 device. According to the procedure of  $V(z)$  curve analysis [1], the waveforms were analyzed so that the LSAW velocities  $V_{\text{LSAW}}$  and normalized attenuation factors  $\alpha_{\text{LSAW}}$  were obtained:

$V_{\text{LSAW}}=3242.79$  m/s and  $\alpha_{\text{LSAW}}= 1.083 \times 10^{-2}$  from Fig. 6(a);

$V_{\text{LSAW}}=3253.60$  m/s and  $\alpha_{\text{LSAW}}= 1.125 \times 10^{-2}$  from Fig. 6(b). The

determined values obtained by the No. 1 device are 0.33% in velocity and 3.7% in attenuation smaller than those obtained by the No. 2 device. The measured results of the angular dependences are given by solid lines in Fig. 7 for the (100) GGG and in Fig. 8 for the (111) GGG. For the (100) GGG,  $0^\circ$  and  $45^\circ$  correspond to the  $[010]$ - and  $[011]$ -propagation directions, respectively, and for the (111) GGG,  $0^\circ$  and  $90^\circ$  correspond to the  $[\bar{1}\bar{1}0]$ - and  $[\bar{1}\bar{1}2]$ -propagation directions, respectively. The average temperatures of the water couplant during measurements were as follows: for the (100) GGG specimen,  $23.129^\circ\text{C}$  by the No. 1 device and  $23.049^\circ\text{C}$  by the No. 2 device; for the (111) GGG specimen,  $22.991^\circ\text{C}$  by the No. 1 device and  $23.121^\circ\text{C}$  by the No. 2 device. The angular dependences exhibit the characteristics reflecting crystal symmetry of the cubic system because GGG crystal belongs to crystal class of  $m\bar{3}m$ . The propagation characteristics of LSAWs for both specimens were calculated, for reference, at  $23.100^\circ\text{C}$  by the analytical procedure of Campbell and Jones [24] using the elastic constants and densities of GGG, determined in the previous section, and of

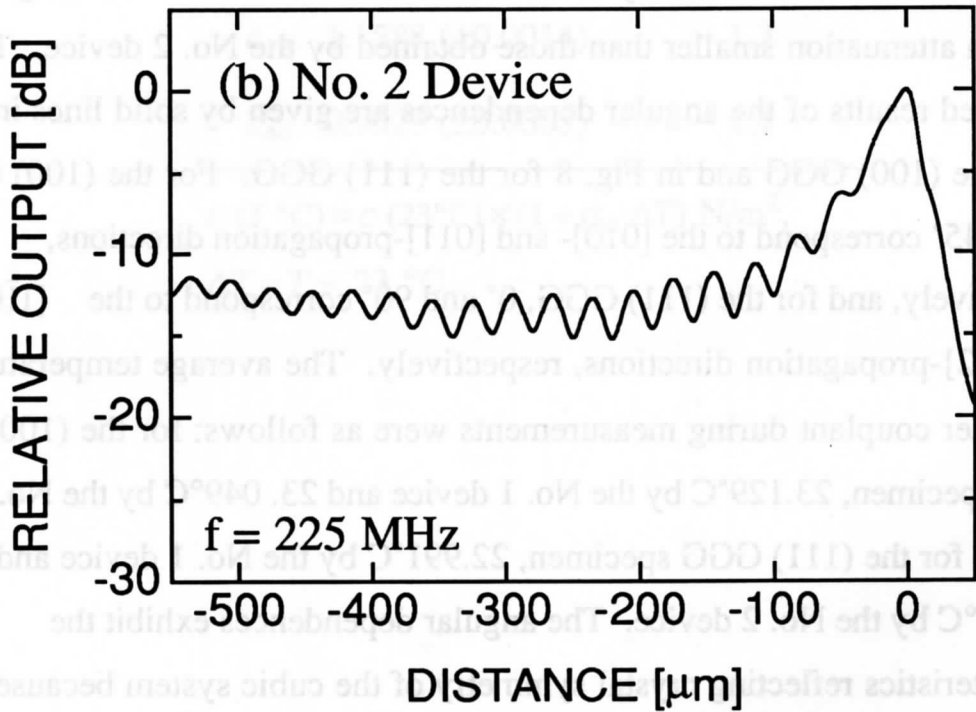
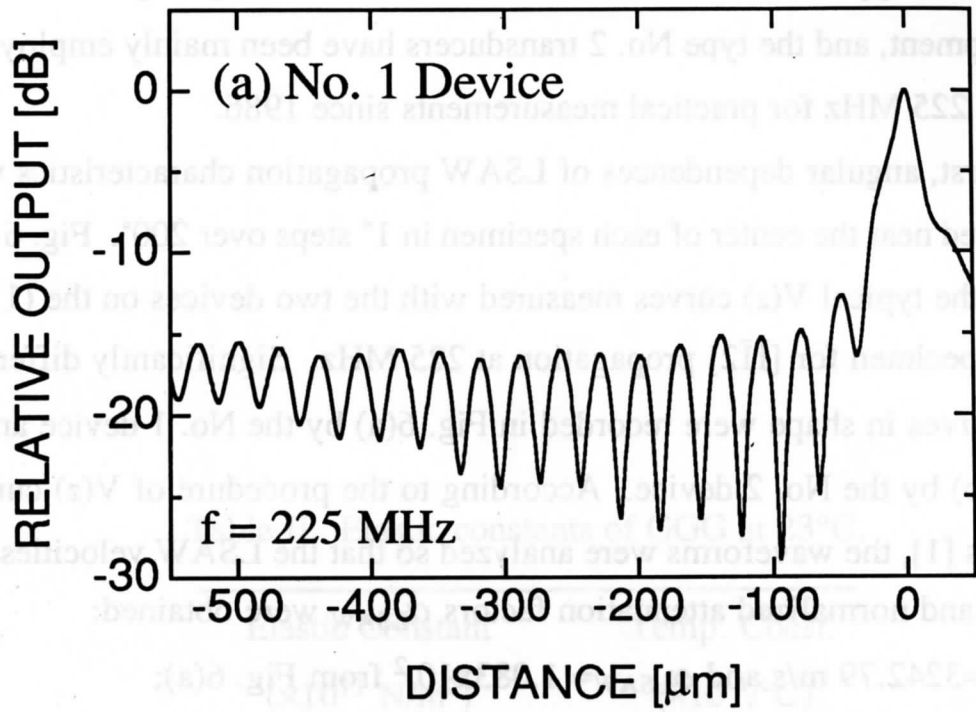
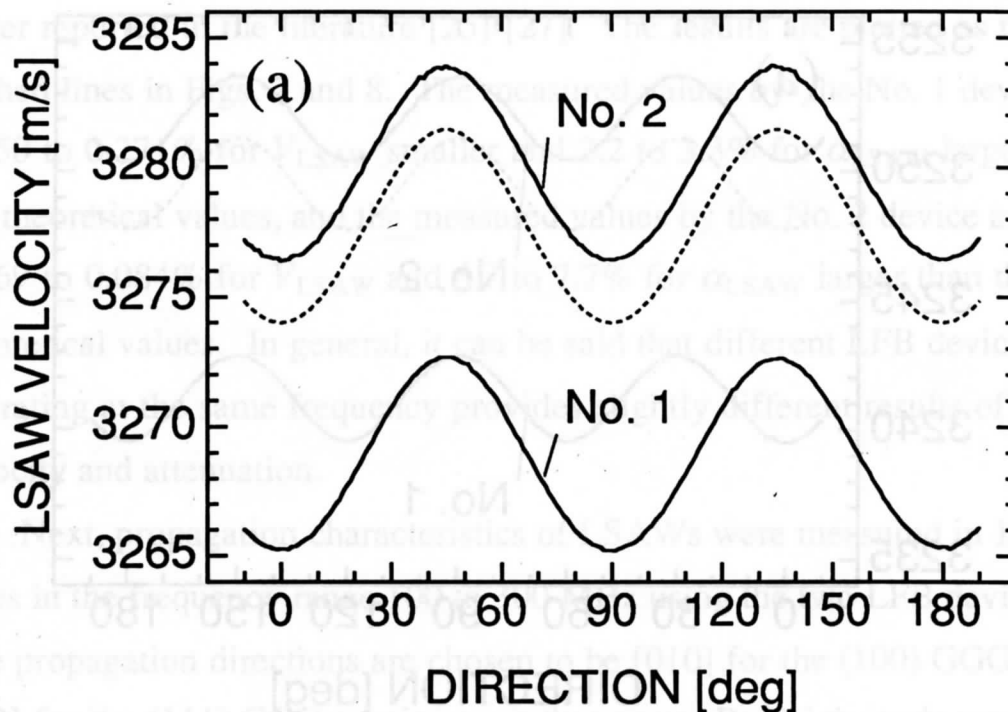
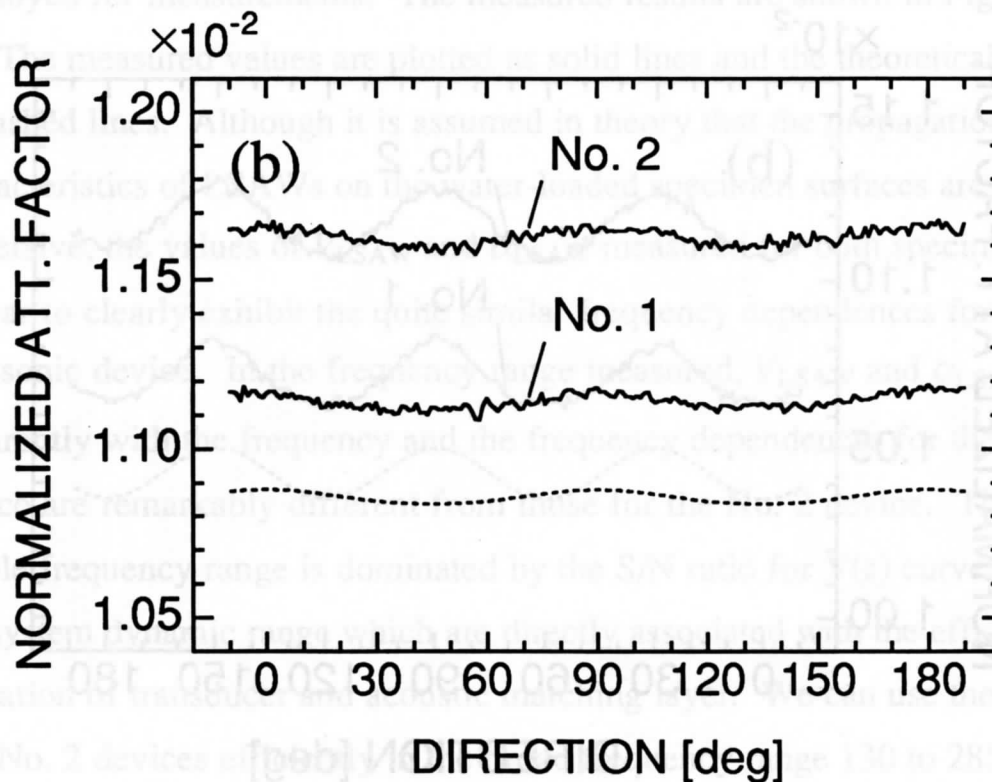


Fig. 6.  $V(z)$  curves measured on a (111) GGG specimen for  $[\bar{1}\bar{1}2]$ -propagation.



(a) LSAW velocity



(b) normalized attenuation factor

Fig. 7. Angular dependences of LSAW propagation characteristics for a (100) GGG specimen.

Solid lines, measured at 225 MHz; dashed lines, calculated.

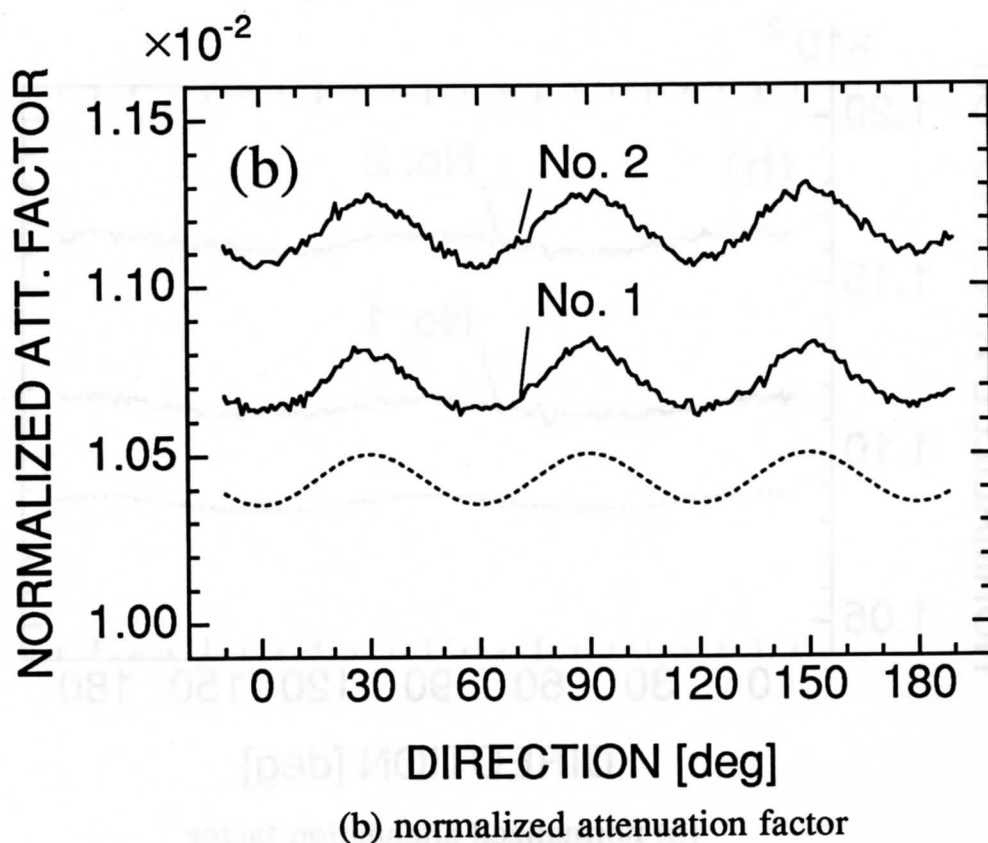
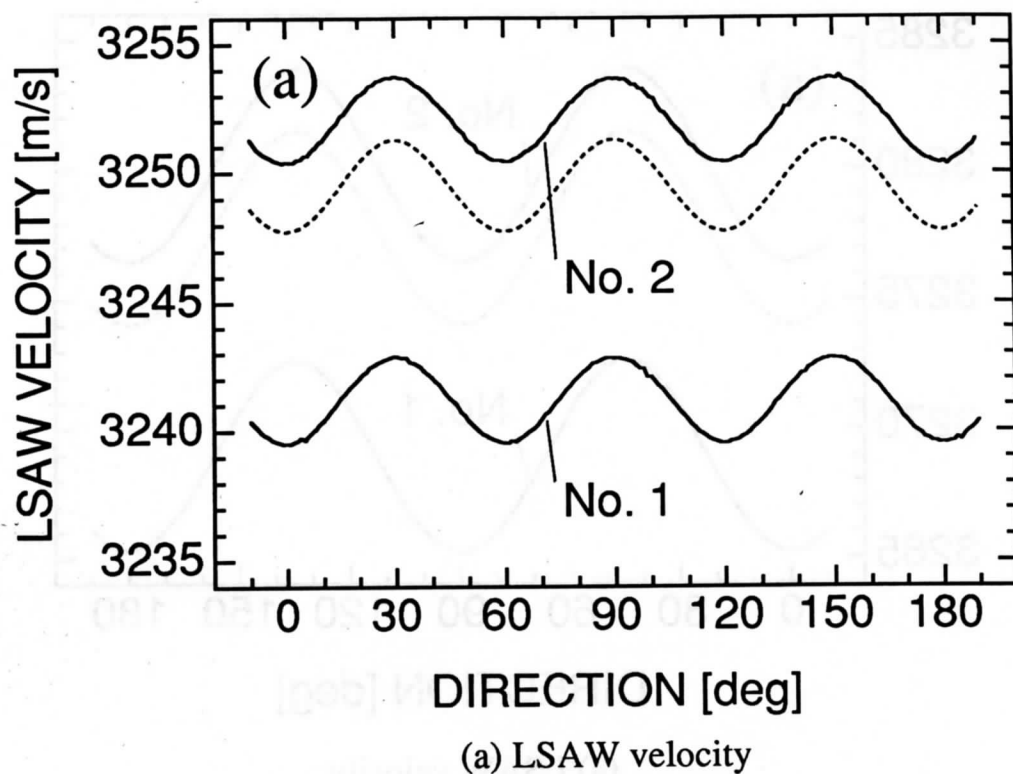


Fig. 8. Angular dependences of LSAW propagation characteristics for a (111) GGG specimen.  
Solid lines, measured at 225 MHz; dashed lines, calculated.



water reported in the literature [25]-[27]. The results are plotted as the dashed lines in Figs. 7 and 8. The measured values by the No. 1 device are 0.250 to 0.271% for  $V_{\text{LSAW}}$  smaller and 2.2 to 3.3% for  $\alpha_{\text{LSAW}}$  larger than the theoretical values, and the measured values by the No. 2 device are 0.069 to 0.084% for  $V_{\text{LSAW}}$  and 6.7 to 7.7% for  $\alpha_{\text{LSAW}}$  larger than the theoretical values. In general, it can be said that different LFB devices operating at the same frequency provides slightly different results of velocity and attenuation.

Next, propagation characteristics of LSAWs were measured in 1 MHz steps in the frequency range 100 to 300 MHz using the two LFB devices. The propagation directions are chosen to be [010] for the (100) GGG and  $[\bar{1}\bar{1}2]$  for the (111) GGG specimen, so that a pure Rayleigh mode was employed for measurements. The measured results are shown in Figs. 9 and 10. The measured values are plotted as solid lines and the theoretical values as dashed lines. Although it is assumed in theory that the propagation characteristics of LSAWs on the water-loaded specimen surfaces are not dispersive, the values of  $V_{\text{LSAW}}$  and  $\alpha_{\text{LSAW}}$  measured for both specimens appear to clearly exhibit the quite similar frequency dependences for each ultrasonic device. In the frequency range measured,  $V_{\text{LSAW}}$  and  $\alpha_{\text{LSAW}}$  vary apparently with the frequency and the frequency dependences for the No. 1 device are remarkably different from those for the No. 2 device. The usable frequency range is dominated by the S/N ratio for  $V(z)$  curves and the system dynamic range which are directly associated with the efficient operation of transducer and acoustic matching layer. We can use the No. 1 and No. 2 devices efficiently in the broad frequency range 130 to 285 MHz for velocity measurements, and, for attenuation measurements, 130 to 230 MHz for the No. 1 device and 130 to 260 MHz for the No. 2 device.

Then, to check the measurement resolution and reproducibility in measurements, LSAW propagation characteristics were measured with the

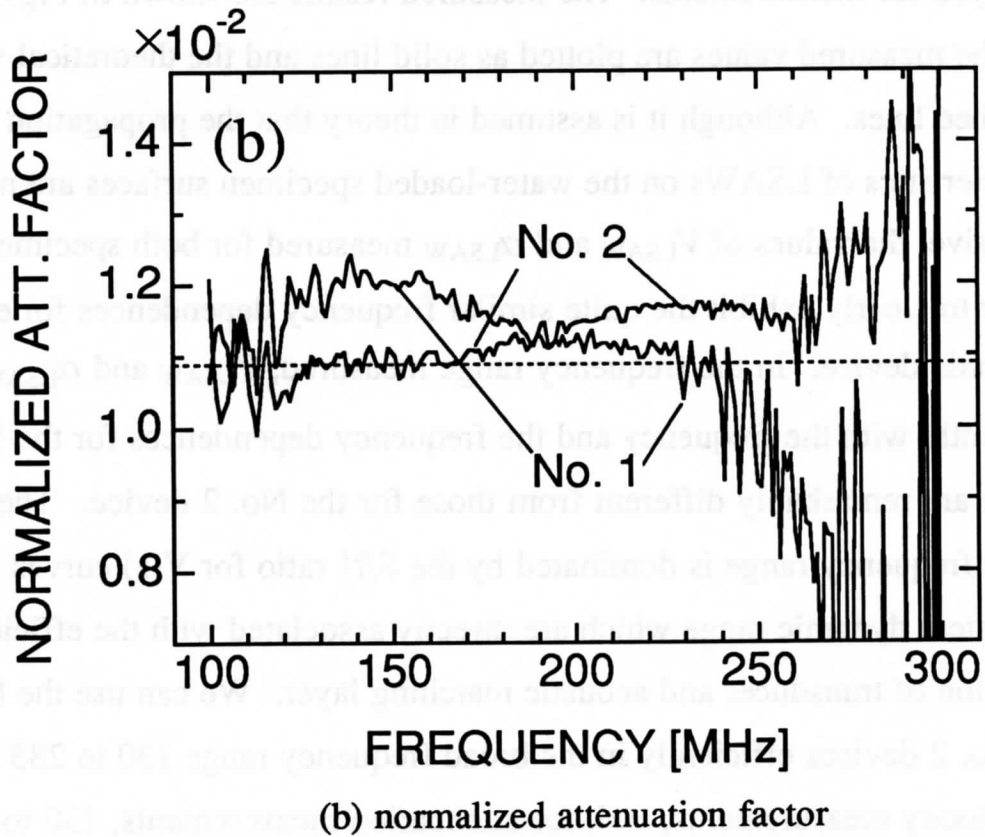
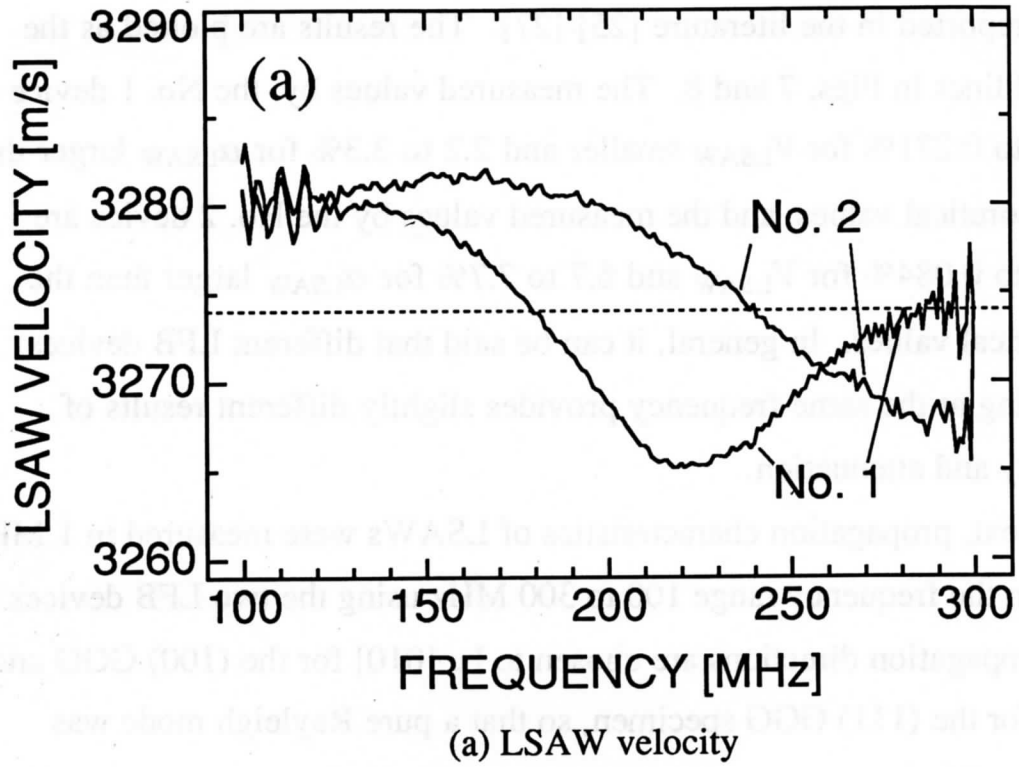
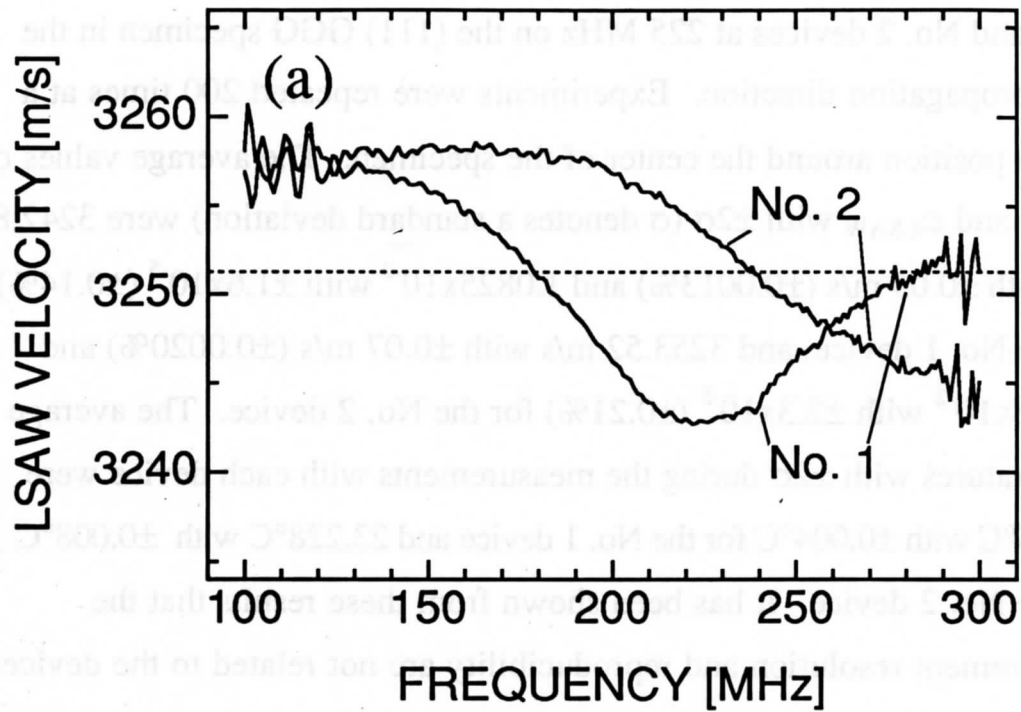
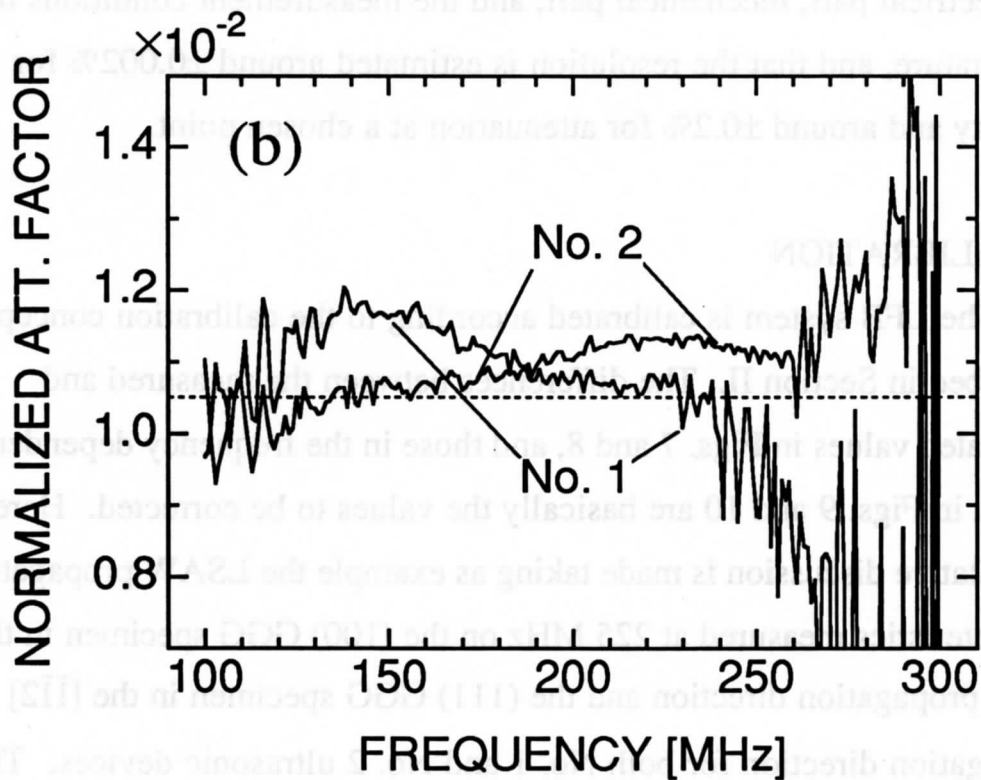


Fig. 9. Frequency dependences of LSAW propagation characteristics for a (100)-[010] GGG specimen.  
Solid lines, measured; dashed lines, calculated.



(a) LSAW velocity



(b) normalized attenuation factor

Fig. 10. Frequency dependences of LSAW propagation characteristics for a (111)-[ $\bar{1}\bar{1}2$ ] GGG specimen.

Solid lines, measured; dashed lines, calculated.

No. 1 and No. 2 devices at 225 MHz on the (111) GGG specimen in the  $[\bar{1}\bar{1}2]$  propagation direction. Experiments were repeated 200 times at a certain position around the center of the specimen. The average values of  $V_{\text{LSAW}}$  and  $\alpha_{\text{LSAW}}$  with  $\pm 2\sigma$  ( $\sigma$  denotes a standard deviation) were 3242.81 m/s with  $\pm 0.05$  m/s ( $\pm 0.0013\%$ ) and  $1.0825 \times 10^{-2}$  with  $\pm 1.6 \times 10^{-5}$  ( $\pm 0.14\%$ ) for the No. 1 device, and 3253.52 m/s with  $\pm 0.07$  m/s ( $\pm 0.0020\%$ ) and  $1.1308 \times 10^{-2}$  with  $\pm 2.3 \times 10^{-5}$  ( $\pm 0.21\%$ ) for the No. 2 device. The average temperatures with  $\pm 2\sigma$  during the measurements with each device were  $23.035^\circ\text{C}$  with  $\pm 0.004^\circ\text{C}$  for the No. 1 device and  $23.228^\circ\text{C}$  with  $\pm 0.008^\circ\text{C}$  for the No. 2 device. It has been shown from these results that the measurement resolution and reproducibility are not related to the devices, but directly to the system stability associated with all kinds of stabilities of the electrical part, mechanical part, and the measurement conditions of temperature, and that the resolution is estimated around  $\pm 0.002\%$  for velocity and around  $\pm 0.2\%$  for attenuation at a chosen point.

## V. CALIBRATION

The LFB system is calibrated according to the calibration concept described in Section II. The differences between the measured and calculated values in Figs. 7 and 8, and those in the frequency dependences shown in Figs. 9 and 10 are basically the values to be corrected. Here, a quantitative discussion is made taking as example the LSAW propagation characteristics measured at 225 MHz on the (100) GGG specimen in the [010] propagation direction and the (111) GGG specimen in the  $[\bar{1}\bar{1}2]$  propagation direction for both No. 1 and No. 2 ultrasonic devices. The measured and theoretical values of LSAW propagation characteristics at the temperature for the measurements are given in Table III for the (100)-[010] GGG specimen and in Table IV for the (111)- $[\bar{1}\bar{1}2]$  GGG specimen. For the (100)-[010] GGG specimen, the corrections are as follows: for the No. 1

Table III. Calculated and measured LSAW propagation characteristics of a (100)-[010] GGG specimen at 225 MHz.

Ultrasonic Device	$V_{\text{LSAW}}$ (m/s)		$\alpha_{\text{LSAW}}$		Temperature (°C)
	Calculated	Measured	Correction	Calculated	Measured
No. 1	3274.00	3265.26	+ 8.74 (+ 0.267 %)	$1.088 \times 10^{-2}$	$1.115 \times 10^{-2}$
					$- 0.027 \times 10^{-2}$ (- 2.5 %)
No. 2	3273.99	3276.44	- 2.45 (- 0.075 %)	$1.088 \times 10^{-2}$	$1.166 \times 10^{-2}$
					$- 0.078 \times 10^{-2}$ (- 7.2 %)
					23.037
					23.095

Table IV. Calculated and measured LSAW propagation characteristics of a (111)- $[\bar{1}\bar{1}2]$  GGG specimen at 225 MHz.

Ultrasonic Device	$V_{\text{LSAW}}$ (m/s)			$\alpha_{\text{LSAW}}$		Temperature (°C)
	Calculated	Measured	Correction	Calculated	Measured Correction	
No. 1	3251.27	3242.81	+ 8.46	$1.050 \times 10^{-2}$	$1.083 \times 10^{-2}$	23.035
			(+ 0.260 %)		(- 3.1 %)	
No. 2	3251.24	3253.52	- 2.28	$1.051 \times 10^{-2}$	$1.131 \times 10^{-2}$	23.228
			(- 0.070 %)		(- 7.6 %)	

device, +8.74 m/s (+0.267%) as  $V_{\text{LSAW}}$  and  $-2.7 \times 10^{-4}$  (-2.5%) as  $\alpha_{\text{LSAW}}$ ; for the No. 2 device, -2.45 m/s (-0.075%) as  $V_{\text{LSAW}}$  and  $-7.8 \times 10^{-4}$  (-7.2%) as  $\alpha_{\text{LSAW}}$ . And, for the (111)- $[\bar{1}\bar{1}2]$  GGG specimen, the corrections are as follows: for the No. 1 device, +8.46 m/s (+0.260%) as  $V_{\text{LSAW}}$  and  $-3.3 \times 10^{-4}$  (-3.1%) as  $\alpha_{\text{LSAW}}$ ; for the No. 2 device, -2.28 m/s (-0.070%) as  $V_{\text{LSAW}}$  and  $-8.0 \times 10^{-4}$  (-7.6%) as  $\alpha_{\text{LSAW}}$ .

Considering the reproducibility in  $V(z)$  curve measurements presented in Section IV and the measurement errors in bulk acoustic properties for the standard specimens, the absolute accuracy after calibration could be estimated to be better than  $\pm 0.02\%$  in velocity and around  $\pm 0.2\%$  in attenuation.

## VI. DISCUSSION

To investigate the causes of the observed differences, a cross-sectional geometry of the LFB acoustic lens, which explains the construction mechanism of  $V(z)$  curves, is illustrated in Fig. 11. When the relative distance  $z$  between the ultrasonic device and the specimen surface is changed, the output of the transducer is recorded as a  $V(z)$  curve waveform with periodic oscillations, as shown in Fig. 6. This is the interference of the two components #0 and #1 in Fig. 11, which mainly contribute to the transducer output. The LSAW propagation characteristics of the phase velocity and attenuation are determined with the oscillation interval  $\Delta z$  and attenuation  $\alpha_0$  of the  $V(z)$  curve using the following relations,

$$V_{\text{LSAW}} = \frac{V_w}{\sqrt{1 - \left(1 - \frac{V_w}{2f\Delta z}\right)^2}}, \quad (5)$$

$$\alpha_{\text{LSAW}} = \frac{\alpha_0 \cos \theta_{\text{LSAW}} + 2\alpha_w}{2k_{\text{LSAW}} \sin \theta_{\text{LSAW}}}, \quad (6)$$



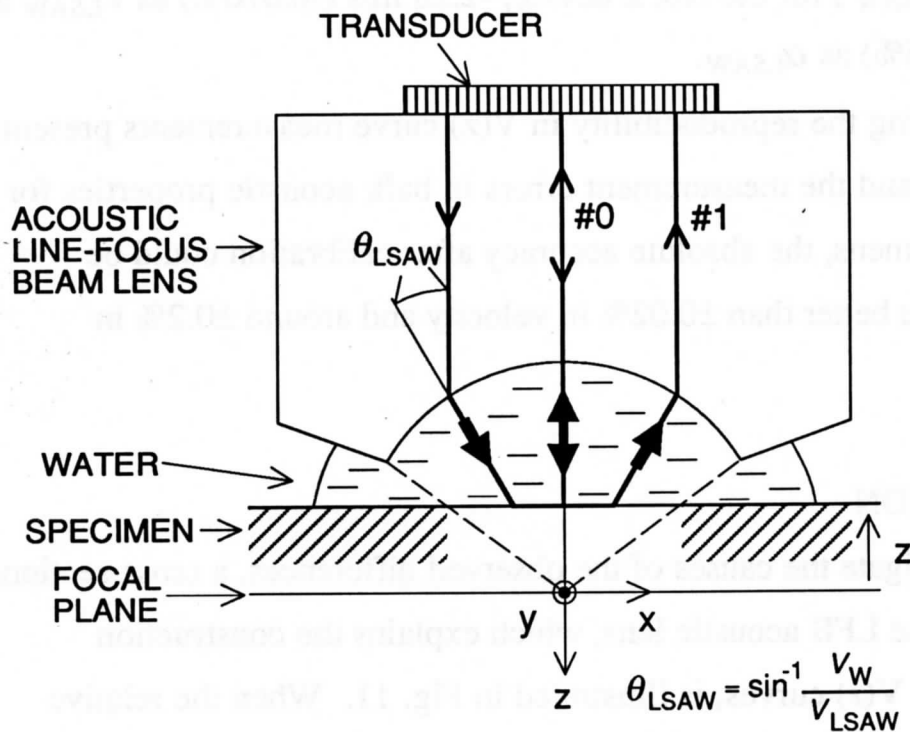


Fig. 11. A cross-section of the LFB acoustic lens to explain  $V(z)$  curve measurements.

where  $V_W$  and  $\alpha_W$  are the velocity and propagation attenuation of longitudinal waves for water, respectively, and  $k_{LSAW}$  is the wavenumber of LSAWs which equals  $\omega/V_{LSAW}$ . It is seen from the above equations that, in the determination of LSAW propagation characteristics, the measurement accuracy of  $V_{LSAW}$  depends on the accuracy of  $\Delta z$  and  $V_W$ , and the accuracy of  $\alpha_{LSAW}$  depends on the accuracy of  $\alpha_0$  and  $\alpha_W$  as well as  $\Delta z$  and  $V_W$ .

The measured values of  $V_{LSAW}$  should be considered to be affected mainly by the precision straightness of the z-axis mechanical translation stage (Z stage) used for  $V(z)$  curve measurements, and by the difference from the idealized measurement model, concerned with the ultrasonic devices employed, in which the diffraction problem in the focused waves also must be included in considerations. These measurement error factors give rise to an error of the periodic oscillation interval  $\Delta z$  in the  $V(z)$  curve.

For very accurate absolute measurements, it is essential to prepare the standard specimens of materials to be characterized and the device/system must be calibrated for the materials. However, when the real standard specimens are not available, other proper standard specimens, whose bulk acoustic properties are accurately measured and whose LSAW velocities are quite close to those for materials to be measured, can be employed according to the following procedure.

From the calculated and measured values of  $V_{LSAW}$  for the temporary standard specimens and using (5), the corresponding values of  $\Delta z_{ST}(\text{calc.})$  and  $\Delta z_{ST}(\text{meas.})$  can be calculated and the correction coefficients thus obtained  $K(V)$  are defined as follows:

$$K(V) = \Delta z_{ST}(\text{calc.}) / \Delta z_{ST}(\text{meas.}) . \quad (7)$$

The calibrated values  $\Delta z(\text{calibrated})$  are obtained for the measured values  $\Delta z(\text{measured})$  for the specimens to be corrected as:

$$\Delta z(\text{calibrated}) = K(V) \cdot \Delta z(\text{measured}) . \quad (8)$$

Substituting the values  $\Delta z(\text{calibrated})$  into (5), the absolute values of  $V_{\text{LSAW}}$  are determined for the specimens.

The similar procedures can be taken for  $\alpha_{\text{LSAW}}$ . Calculating the values  $\alpha_{0\text{ST}}(\text{calc.})$  and  $\alpha_{0\text{ST}}(\text{meas.})$  from the calculated and measured values  $\alpha_{\text{LSAW}}$  for the temporary standard specimens with (6), and defining the following correction coefficients  $K(\alpha)$  as:

$$K(\alpha) = \alpha_{0\text{ST}}(\text{calc.})/\alpha_{0\text{ST}}(\text{meas.}) , \quad (9)$$

the calibrated values  $\alpha_0(\text{calibrated})$  are obtained for the measured values  $\alpha_0(\text{measured})$  for the specimens to be corrected as:

$$\alpha_0(\text{calibrated}) = K(\alpha) \cdot \alpha_0(\text{measured}) . \quad (10)$$

Then, substituting the values  $\alpha_0(\text{calibrated})$  into (6), the absolute values of  $\alpha_{\text{LSAW}}$  are determined for the specimens. In determining the  $\alpha_0(\text{calibrated})$ , the corresponding corrected values of  $V_{\text{LSAW}}$  are employed.

This calibration method is discussed using the (100)-[010] and (111)- $[\bar{1}\bar{1}2]$  GGG specimens. When taking a (100)-[010] GGG specimen to be measured and a (111)- $[\bar{1}\bar{1}2]$  GGG specimen as the standard, the corrected results of the measured propagation characteristics at the typical frequencies of 150, 175, 200, 225, and 250 MHz are presented in Table V, together with the calculated results, using the measured results of the frequency dependences for the two GGG crystals shown in Figs. 9 and 10. It is

Table V. Calculated and corrected LSAW propagation characteristics of a (100)-[010] GGG specimen calibrated by the (111)-[112] GGG standard specimen.

Ultrasonic Device	Frequency (MHz)	$V_{LSAW}$ (m/s)		$\alpha_{LSAW}$		Temperature (°C)
		Calculated	Corrected	Calculated	Corrected	
No. 1	150	3274.02	3274.45	$1.0876 \times 10^{-2}$	$1.0804 \times 10^{-2}$	22.928
					+ 0.43 (+ 0.013 %)	
	175	3274.02	3274.20	$1.0876 \times 10^{-2}$	$1.0841 \times 10^{-2}$	22.932
					+ 0.18 (+ 0.006 %)	
	200	3274.02	3273.91	$1.0876 \times 10^{-2}$	$1.0903 \times 10^{-2}$	22.934
					- 0.11 (- 0.003 %)	
	225	3274.02	3273.84	$1.0876 \times 10^{-2}$	$1.0840 \times 10^{-2}$	22.935
					- 0.18 (- 0.005 %)	
	250	3274.02	3273.84	$1.0876 \times 10^{-2}$	$1.0970 \times 10^{-2}$	22.936
					- 0.18 (- 0.005 %)	
No. 2	150	3274.00	3274.46	$1.0878 \times 10^{-2}$	$1.0730 \times 10^{-2}$	23.026
					+ 0.46 (+ 0.014 %)	
	175	3274.00	3274.34	$1.0878 \times 10^{-2}$	$1.0741 \times 10^{-2}$	23.026
					+ 0.34 (+ 0.010 %)	
	200	3274.00	3274.11	$1.0878 \times 10^{-2}$	$1.0849 \times 10^{-2}$	23.026
					+ 0.11 (+ 0.003 %)	
	225	3274.00	3274.19	$1.0878 \times 10^{-2}$	$1.0850 \times 10^{-2}$	23.026
					+ 0.19 (+ 0.006 %)	
	250	3274.00	3274.04	$1.0878 \times 10^{-2}$	$1.0936 \times 10^{-2}$	23.025
					+ 0.04 (+ 0.001 %)	

clarified that this method is very effective for the two different LFB devices, not only for velocity calibration but also for attenuation calibration in this broad frequency range. By this calibration method, the absolute accuracy is attained within better than  $\pm 0.02\%$  in velocity which is almost the same as that by the system calibration using the real standard specimens, and within  $\pm 1-2\%$  in attenuation, under the similar estimation of the measurement errors described in Section V. In this demonstration, the LSAW velocities between the temporary standard specimen and test specimen were very close, less than 1%. Further experimental study concerning the effectiveness for the cases having considerable differences in velocity, larger than several percent, between temporary standard specimens and materials to be measured will be reported elsewhere [28].

Because the measurement of  $\alpha_{\text{LSAW}}$  is done by amplitude measurements, its measurement errors are essentially larger than the measurement errors in  $V_{\text{LSAW}}$  by phase measurements using the interference method, and are sometimes estimated to be up to several percent to a few tens of percent. In addition to the error causing factors in the  $V_{\text{LSAW}}$  measurement, the following factors also might be involved in the errors of the  $\alpha_{\text{LSAW}}$  values: water is treated as an ideal fluid in the theoretical calculation of LSAW propagation characteristics, and accurate values of the attenuation coefficient for water in the VHF range employed in measurements by the LFB system have not been obtained. It can be said that it is impossible to obtain  $\alpha_{\text{LSAW}}$  as accurately as  $V_{\text{LSAW}}$  and that it is not appropriate to use the absolute values of  $\alpha_{\text{LSAW}}$  along with  $V_{\text{LSAW}}$  in an application of LFB acoustic microscopy to determination of the elastic constants of bulk and thin-film materials [3], [4], [10-13].

Homogeneous specimens such as Si and Ge single crystals can be used for system calibration in the different velocity range, in the same way as demonstrated here. However, highly anisotropic materials with a large

number of independent acoustical physical constants should not be suitable for the standard specimens. As the corrections associated with the mechanical Z stage and the measurement model are the common factors subjected to the system, GGG crystal substrates are the more suitable standard specimens for the system calibration, satisfying the required conditions as described in Section II.

Different spatial frequency distributions of the acoustic fields are formed on a solid specimen by different LFB ultrasonic devices and also at different frequencies [1], [29]. From the data obtained by measuring the amplitude and phase of the  $V(z)$  curve for Teflon, on which no leaky surface acoustic waves are excited, the variations of the phase have been found to be directly related to the measured values of LSAW velocity, and, then, the apparent frequency dependences of LSAW velocities, as seen in Figs. 9 and 10, has been quantitatively explained [30]. It can be said, therefore, that such frequency dependences of LSAW propagation characteristics result from the frequency dependence in the performance of LFB ultrasonic devices, depending upon the size and shape of the ultrasonic transducer, the dimensions of the acoustic lens, the thickness and distribution of the acoustic antireflection coating layer, and the ultrasonic frequency. Nevertheless, it is necessary that every propagation characteristic of LSAWs obtained at each frequency must be calibrated individually for the device/system used for the absolute measurements.

## VII. CONCLUSIONS

In this paper, a calibration method for the LFB acoustic microscopy system using standard specimens has been described. In this method, the standard specimens, whose elastic constants and densities are measured with high accuracy, must be used. A study has been conducted on GGG single crystal, which is considered to be one of the most suitable specimens. The



standard has been given by the velocities of bulk acoustic waves and densities measured for two crystalline planes of (100) and (111) GGG as a function of temperature around the room temperature. Then, the LSAW propagation characteristics have been measured by the LFB acoustic microscopy system using two LFB acoustic lens devices with a cylindrical concave surface of 1-mm radius in the frequency range 100 to 300 MHz. The apparent frequency dependences of LSAW velocity and attenuation are observed in measurements on a semi-infinite GGG specimen resulting from the frequency characteristics of the ultrasonic devices. Calibration has been demonstrated by comparing the measured results with the theoretical calculations of LSAW propagation characteristics, using the measured elastic constants and density of GGG and the physical constants of water reported, resulting in the absolute accuracy within  $\pm 0.02\%$  in velocity and around  $\pm 0.2\%$  in attenuation.

It is concluded that calibration is necessary in the measurement of absolute values because the absolute values of LSAW propagation characteristics depend on the system used, especially the LFB ultrasonic device employed, and the operating frequency. The accuracy of attenuation values obtained by amplitude measurements is lower than that of velocity values obtained by phase measurements from interference intervals in  $V(z)$  curves. Therefore, the velocities must be used for quantitative material characterization. However, attenuation can be efficiently used for such a case of determining the elastic constants of thin-film materials by LFB acoustic microscopy, utilizing the significant variations of attenuation near the cut-off of leaky Sezawa waves and leaky pseudo-Sezawa waves [4]. With the use of the calibrated velocities, it is shown that LFB acoustic microscopy will be practically applied to absolute surface characterization of wafers and determination of elastic constants of solid and thin-film materials, in which the absolute values of velocities are essential.



## REFERENCES

- [1] J. Kushibiki and N. Chubachi, "Material characterization by line-focus-beam acoustic microscope," *IEEE Trans. Sonics Ultrason.*, vol. SU-32, pp. 189-212, Mar. 1985.
- [2] J. Kushibiki and N. Chubachi, "Acoustic microscopy for materials characterization," in *Proc. Ultrasonics International 91 Conf.*, Butterworth-Heinemann, Oxford, 1991, pp. 1-13.
- [3] J. Kushibiki, T. Ueda, and N. Chubachi, "Determination of elastic constants by LFB acoustic microscope," *Proc. IEEE Ultrason. Symp.*, 1987, pp. 817-821.
- [4] J. Kushibiki, T. Ishikawa, and N. Chubachi, "Cut-off characteristics of leaky Sezawa and pseudo-Sezawa wave modes for thin-film characterization," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 57, pp. 1967-1969, Nov. 1990.
- [5] P. J. Burnett, G. A. D. Briggs, S. M. Al-Shukri, J. F. Duffy, and R. M. De La Rue, "Acoustic properties of proton-exchanged  $\text{LiNbO}_3$  studied using the acoustic microscopy  $V(z)$  technique," *J. Appl. Phys.*, vol. 60, pp. 2517-2522, 1986.
- [6] C. K. Jen, C. Neron, J. F. Bussiere, L. Li, R. Lowe, and J. Kushibiki, "Characterization of clad glass fibers using acoustic microscopy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 55, pp. 2485-2487, Dec. 1989.
- [7] C. K. Jen, Z. Wang, A. Nicolle, C. Neron, E. L. Adler, and J. Kushibiki, "Acoustic graded-index lenses," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 59, pp. 1398-1400, Sep. 1991.

- [8] C. K. Jen, C. Neron, A. Shang, K. Abe, L. Bonnell, and J. Kushibiki, "Acoustic characterization of silica glasses," *J. Amer. Ceram. Soc.*, vol. 76, pp. 712-716, 1993.
- [9] M. Obata, H. Shimada, and T. Mihara, "Stress dependence of leaky surface wave on PMMA by line-focus-beam acoustic microscope," *Exper. Mech.*, vol. 30, pp. 34-39, Mar. 1990.
- [10] T. Mihara and M. Obata, "Elastic constant measurement by using line-focus-beam acoustic microscope," *Exper. Mech.*, vol. 32, pp. 30-33, Mar. 1992.
- [11] J. O. Kim, J. D. Achenbach, P. B. Mirkarimi, M. Shinn, and S. A. Barnett, "Elastic constants of single-crystal transition-metal nitride films measured by line-focus acoustic microscopy," *J. Appl. Phys.*, vol. 72, pp. 1805-1811, Sep. 1992.
- [12] J. O. Kim, J. D. Achenbach, M. Shinn, and S. A. Barnett, "Effective elastic constants and acoustic properties of single-crystal TiN/NbN superlattices", *J. Mater. Res.*, vol. 7, pp. 2248-2256, Aug. 1992.
- [13] Y.-C. Lee, J. O. Kim, and J. D. Achenbach, "Acoustic microscopy measurement of elastic constants and mass density," *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr.*, vol. 42, pp. 253-264, Mar. 1995.
- [14] J. Kushibiki, H. Takahashi, T. Kobayashi, and N. Chubachi, "Quantitative evaluation of elastic properties of LiTaO<sub>3</sub> crystals by line-focus-beam acoustic microscopy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 58, pp. 893-895, Mar. 1991.

- [15] J. Kushibiki, H. Takahashi, T. Kobayashi, and N. Chubachi, "Characterization of  $\text{LiNbO}_3$  crystals by line-focus-beam acoustic microscopy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 58, pp. 2622-2624, June 1991.
- [16] J. Kushibiki, T. Kobayashi, H. Ishiji, and N. Chubachi, "Elastic properties of 5-mol%  $\text{MgO}$  doped  $\text{LiNbO}_3$  crystals measured by line-focus-beam acoustic microscopy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 61, pp. 2164-2166, Nov. 1992.
- [17] J. Kushibiki, H. Ishiji, T. Kobayashi, N. Chubachi, I. Sahashi, and T. Sasamata, "Characterization of  $36^\circ\text{YX-LiTaO}_3$  wafers by line-focus-beam acoustic microscopy," *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr.*, vol. 42, pp. 83-90, Jan. 1995.
- [18] J. Kushibiki, M. Miyashita, and N. Chubachi, "Quantitative characterization of proton-exchanged layers in  $\text{LiTaO}_3$  optoelectronic devices by line-focus-beam acoustic microscopy," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 8, pp. 1516-1518, Nov. 1996.
- [19] T. Kobayashi, J. Kushibiki, and N. Chubachi, "Improvement of measurement accuracy of line-focus-beam acoustic microscope system," *Proc. IEEE Ultrason. Symp.*, 1992, pp. 739-742.
- [20] J. Kushibiki, T. Wakahara, T. Kobayashi, and N. Chubachi, "A calibration method of the LFB acoustic microscope system using isotropic standard specimens," *Proc. IEEE Ultrason. Symp.*, 1992, pp. 719-722.

- [21] J. Kushibiki, N. Akashi, T. Sannomiya, N. Chubachi, and F. Dunn, "VHF/UHF range bioultrasonic spectroscopy system and method," *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr.*, vol. 42, pp. 1028-1039, Nov. 1995.
- [22] J. Williams and J. Lamb, "On the measurement of ultrasonic velocity in solids," *J. Acoust. Soc. Amer.*, vol. 30, pp. 308-313, Apr. 1958.
- [23] J. Kushibiki and M. Arakawa, "Accurate measurements of the acoustical physical constants of nonpiezoelectric single crystals," submitted for publication.
- [24] J. J. Campbell and W. R. Jones, "Propagation of surface waves at the boundary between a piezoelectric crystal and a fluid medium," *IEEE Trans. Sonics Ultrason.*, vol. SU-17, pp. 71-76, Apr. 1970.
- [25] W. Kroebel and K.-H. Mahrt, "Recent results of absolute sound velocity measurements in pure water and sea water at atmospheric pressure," *Acustica*, vol. 35, pp. 154-164, 1976.
- [26] J. M. M. Pinkerton, "The absorption of ultrasonic waves in liquids and its relation to molecular constitution," *Proc. Phys. Soc.*, vol. B20, pp. 129-141, Feb. 1949.
- [27] G. S. Kell, "Density, thermal expansivity, and compressibility of liquid water from 0° to 150°C: correlations and tables for atmospheric pressure and saturation reviewed and expressed on 1968 temperature scale," *J. Chem. Eng. Data*, vol. 20, pp. 97-105, 1975.

- [28] J. Kushibiki and M. Arakawa, "Calibration of the line-focus-beam acoustic microscopy system using several standard specimen in the velocity range 2500-6000 m/s," submitted for publication.
- [29] J. Kushibiki, Y. Matsumoto, and N. Chubachi, "Effects of acoustic field distribution of line-focus-beam on  $V(z)$  curves," in *Rep. Spring Meeting Acoust. Soc. Jpn.*, pp. 661-662, Mar. 1983.
- [30] Y. Ono, J. Kushibiki, and N. Chubachi, "Experimental study of construction mechanism of  $V(z)$  curves obtained by the line-focus-beam acoustic microscope," in *Tech. Rep. IEICE*, vol. US94-51, pp. 29-36, Sep. 1994.

## 2. LiTaO<sub>3</sub>単結晶試料の作製と従来の手法による特性評価

### 2-1 まえがき

LFB超音波顕微鏡によりLiTaO<sub>3</sub>単結晶の均質性を評価するためには、LSAW速度と化学組成比の関係を明らかにする必要がある。本章ではこれを実現するために用意した単結晶とその基礎的な特性について示す。まず2-2節において、単結晶の育成条件と形状について示す。次に結晶の均質性の評価に適した基板の作製について述べる。2-3節では、前節で用意した試料の基礎的な特性として、化学組成比と密度を従来用いられている分析手法により評価する。

### 2-2 単結晶および基板の作製

#### 単結晶の作製

LiTaO<sub>3</sub>単結晶のコングルエント組成は48.5 Li<sub>2</sub>O mol%付近のTa-richな領域に存在する[1, 2]。したがって、LFB超音波顕微鏡により化学組成の評価を行なうには、この付近におけるLSAW速度と化学組成比の関係を把握する必要がある。そこで原料仕込時におけるLi<sub>2</sub>Oの含有率を48、48.5、49 mol%とした3種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶と、市販の光学用LiTaO<sub>3</sub>単結晶（コングルエント組成、48.55 Li<sub>2</sub>O mol%）を用意した。これらはCzochralski (CZ) 法により結晶Y軸の方向に育成されている。各結晶の形状を表2-1に示す。

以後、本論文では、原料仕込時におけるLi<sub>2</sub>Oの含有率により、これら4種類の結晶を区別する。

#### 基板の作製

用意した単結晶の均質性を評価するためには、結晶の育成方向あるいは直径方向に対して並行に切り出した基板が望ましい。そこで図2-1に示すように、X-cut、Y-cut、およびZ-cut基板を切り出した。各基板の概形を図2-2に示す。Z-cut基板は結晶の育成方向および直径方向における均質性を1枚の基板上で評価するために用いる。Y-cut基板は結晶の直径方向における均質性の評価に用いる他に、育成方向における均質性を密度の分布として捉えるために用いる。X-cut基板は結晶の育成方向における均質性と結晶の平均的な密度を評価するために用いる。

基板の作製において、X-cut基板およびZ-cut基板はX線回折法により各面を正確に測定して切り出した。Y-cut基板は、結晶の上端面がX線回折法によりY面として

表2-1  $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の仕込組成比と形状

	Prepared Composition		Length	Diameter
	$\text{Li}_2\text{O}$ [mol%]	$\text{Ta}_2\text{O}_5$ [mol%]		
(1)	48.00	52.00	68	77
(2)	48.50	51.50	66	77
(3)*	48.55	51.45	79	101
(4)	49.00	51.00	67	77

\* Commercial optical-grade  $\text{LiTaO}_3$  crystal with Congruent composition.



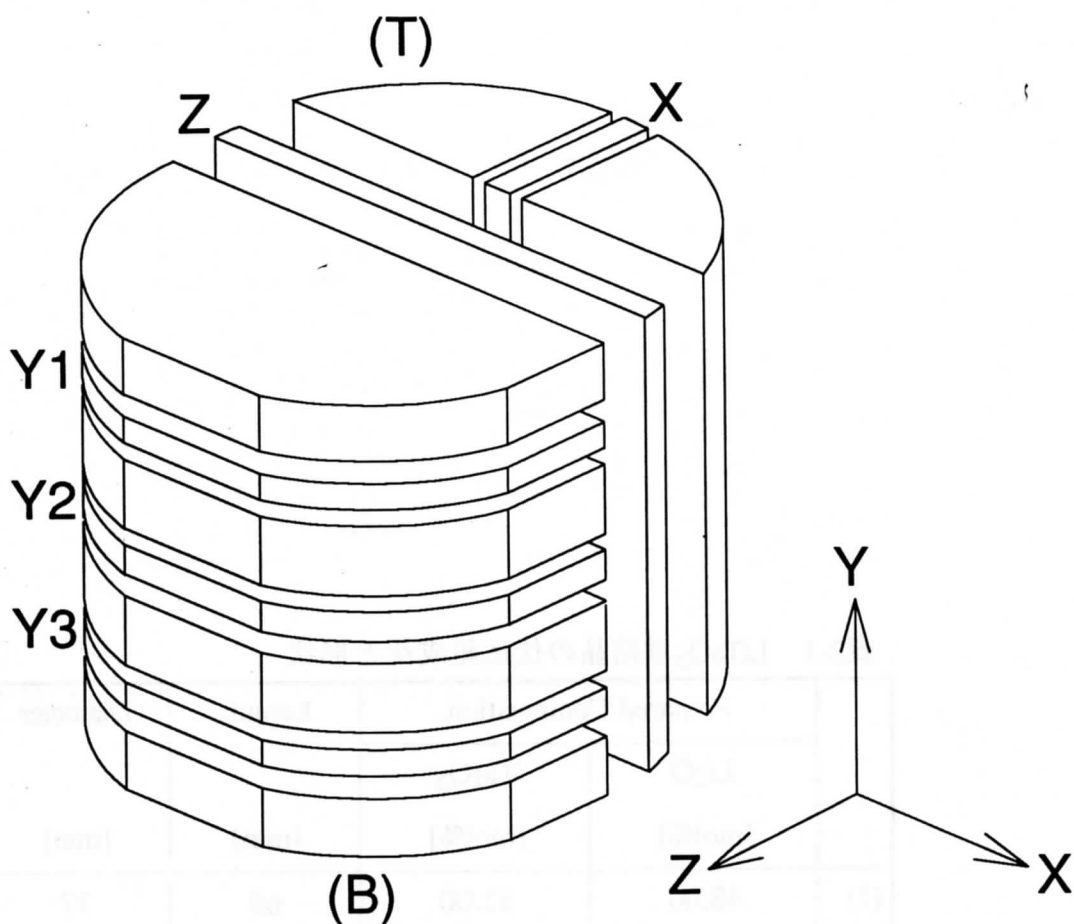


図2-1 LiTaO<sub>3</sub>単結晶と試料の作製

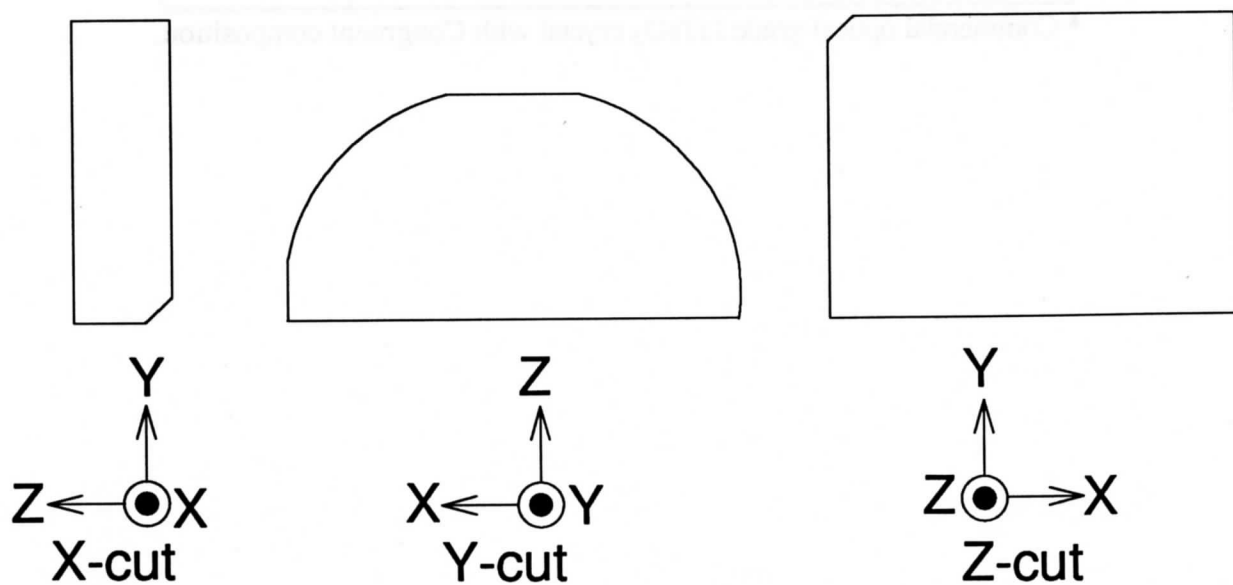


図2-2 基板の概形

正確に切り出されていることを利用し、この面を基準としてバンドソーにより複数枚を同時に切り出した。

各基板の厚さは、バルク波速度の測定において必要な厚さを考慮して3~4 mmとした。各基板の表面は光学研磨されている。

## 結晶面と試料面の不一致

先述のように、Y-cut基板はX線回折法による面方位の測定を省略して切り出したため、試料面と結晶面が一致していない可能性がある。そこでX線回折法によりこれらのずれの程度を測定した。試料は各結晶のY1の基板とした。図2-3に結晶面に対する試料面の傾き角および傾き方向を表わす座標系を示す。表2-2に測定結果を示す。傾き角は $0.07^{\circ}$ ~ $0.12^{\circ}$ と大きい。Y-cut基板はバンドソーで切り出しているため、Y2、Y3の基板も同様のずれを有すると考えられる。LSAW速度やバルク波速度の測定においてはこれらの影響を考慮する必要がある。

## 2-3 結晶の基礎的な特性の評価

一般に、コングルエント組成ではない融液から育成された結晶の化学組成比は、融液の化学組成比とは一致しない[1, 2]。したがって、2-2節で準備した4種類の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の実際の化学組成比も原料仕込み時とは異なっていると考えられる。そこで本節では、従来よく用いられてきたICP-AES法やXRF法、DTA法により化学組成分析を行ない、これらの結晶の化学組成比を把握する。また密度を測定し、化学組成比との関係を求める。

### 2-3-1 化学組成分析

#### 試料

本節で行なう化学組成分析は試料の破壊を伴うため、2-2節で示した結晶とは別の4種類の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶を用いた。ただし、これらの結晶の原料仕込時における $\text{Li}_2\text{O}$ の含有率や結晶の育成方向は先の結晶と同じである。各結晶の中央部における化学組成比を結晶の値として代表させるために、図2-4に示すように、結晶の上部側端面より24.3 mmの位置においてY-cut基板を切り出して分析用の試料とした。ICP-AES法とDTA法に用いる試料はアルミナ製の磁器を用いて粉末にした。

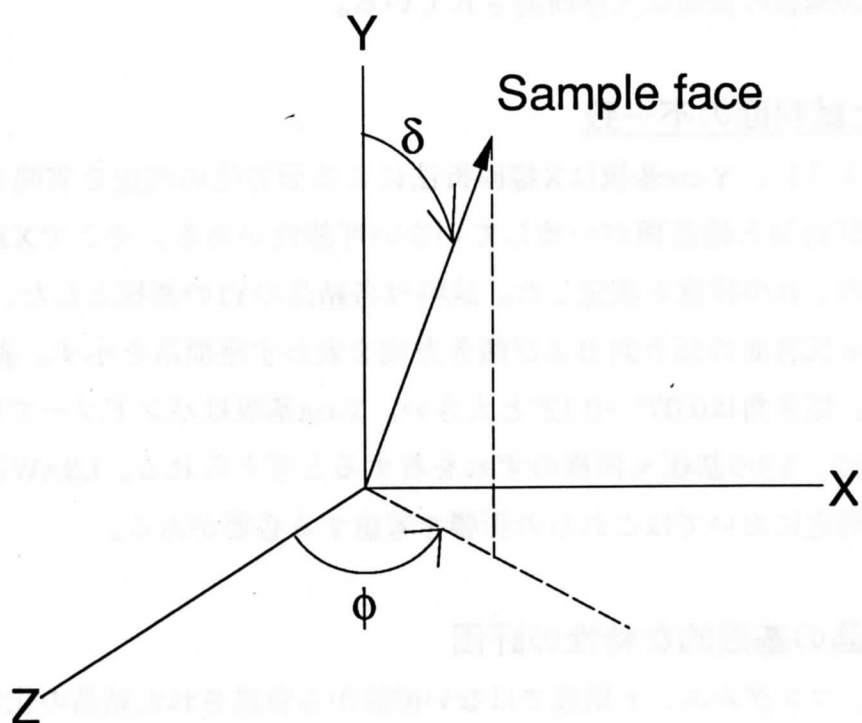


図2-3 結晶面と試料面の間のずれを示す座標系

表2-2 Y-cut面における試料面と結晶面のずれ

Prepared $\text{Li}_2\text{O}$ [mol%]	$\phi$ [deg]	$\delta$ [deg]
48.00	-139.352	0.112
48.50	151.381	0.104
48.55 (Congruent)	-14.389	0.079
49.0	-30.991	0.073

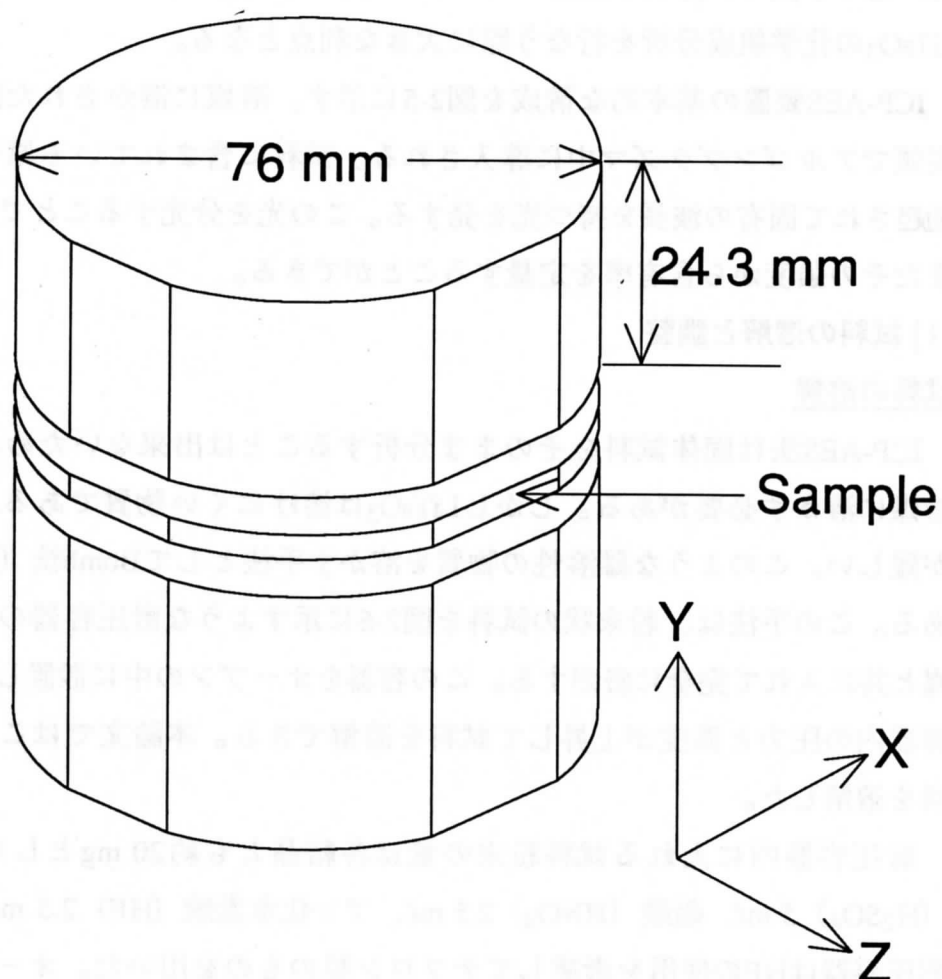


図2-4 化学組成分析用の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶と試料の切り出し位置

## ICP-AES法による分析

ICP-AES法は検量線のダイナミックレンジが広いことや何種類もの元素を同時に分析できること、微量元素の検出が可能であることなど優れた点を有している。特に他の手法では分析が困難であるLiに対して直接に定量分析を行なえることは、 $\text{LiTaO}_3$ の化学組成分析を行なう際に大きな利点となる。

ICP-AES装置の基本的な構成を図2-5に示す。溶媒に溶かされた試料は霧吹きの一翼でアルゴンプラズマ中に導入される。試料に含まれている原子はプラズマに励起されて固有の波長を持つ光を発する。この光を分光することで元素の特定を、またその強度から含有率を定量することができる。

### (i) 試料の溶解と調整

#### 試料の溶解

ICP-AES法は固体試料をそのまま分析することは出来ないため、事前に適切な溶媒に溶かす必要がある。しかし $\text{LiTaO}_3$ は溶けにくい物質であるためにこの処理が難しい。このような難溶性の物質を溶かす手法としてBomb法（加圧溶解法）がある。この手法は、粉末状の試料を図2-6に示すような耐圧容器の中に酸などの溶媒と共にに入れて完全に密閉する。この容器をオーブンの中に設置して加熱すると、容器内の圧力と温度が上昇して試料を溶解できる。本論文ではこの手法により試料を溶解した。

耐圧容器内に入れる試料粉末の量は各結晶とも約20 mgとした。溶媒は硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) 5 ml、硝酸( $\text{HNO}_3$ ) 2.5 ml、フッ化水素酸(HF) 2.5 mlの混酸である。耐圧容器はHFの使用を考慮してテフロン製のものを用いた。オーブン内の温度は160 °Cとし、約18時間かけて溶解した。完全に溶解したことは目視により判断した。そののち、溶液を別のテフロン製のビーカーに移し、電熱器の上で緩やかに加熱してHFと $\text{HNO}_3$ を溶液中から除去した。最後に、Taの加水分解を防ぐために過酸化水素水( $\text{H}_2\text{O}_2$ )を1 ml加えた。この様な手順により各結晶ごとに3つの試料溶液を作製した。

ところで、ICP-AES法では分析を精度良く行なうために内標準法[付録A]による比較測定を行なうことが多い。本論文においてもこの方法を用いた。内標準元素はLiやTaの発光に影響を及ぼさないイットリウム(Y)とした。全ての試料溶液は、Yの内標準溶液を5 mlずつ加えたのちにメスフラスコに移し、蒸留水により50 mlに希釈・秤量した。

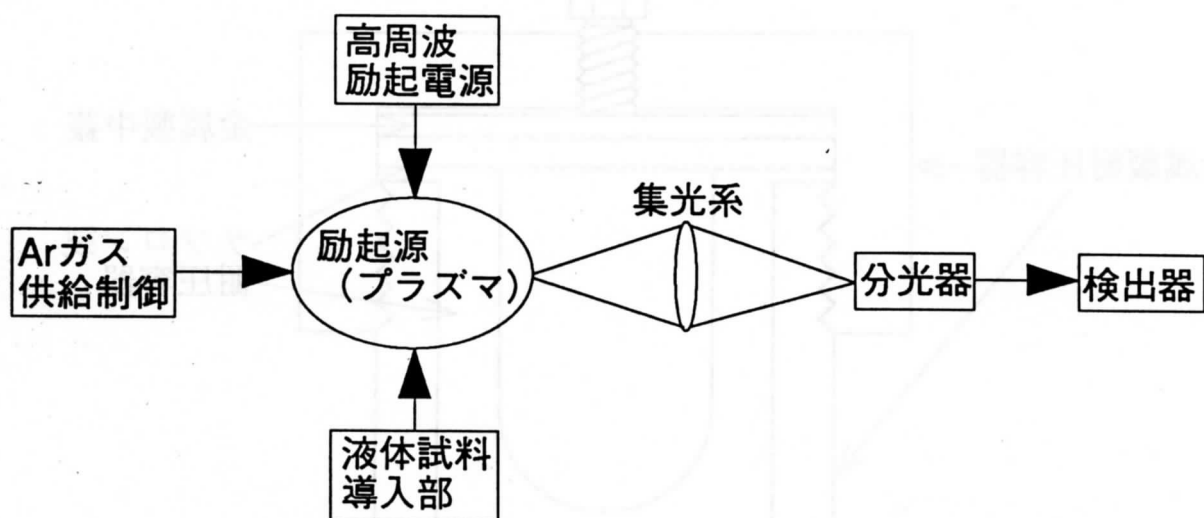


図2-5 ICP-AES装置の基本的な構成

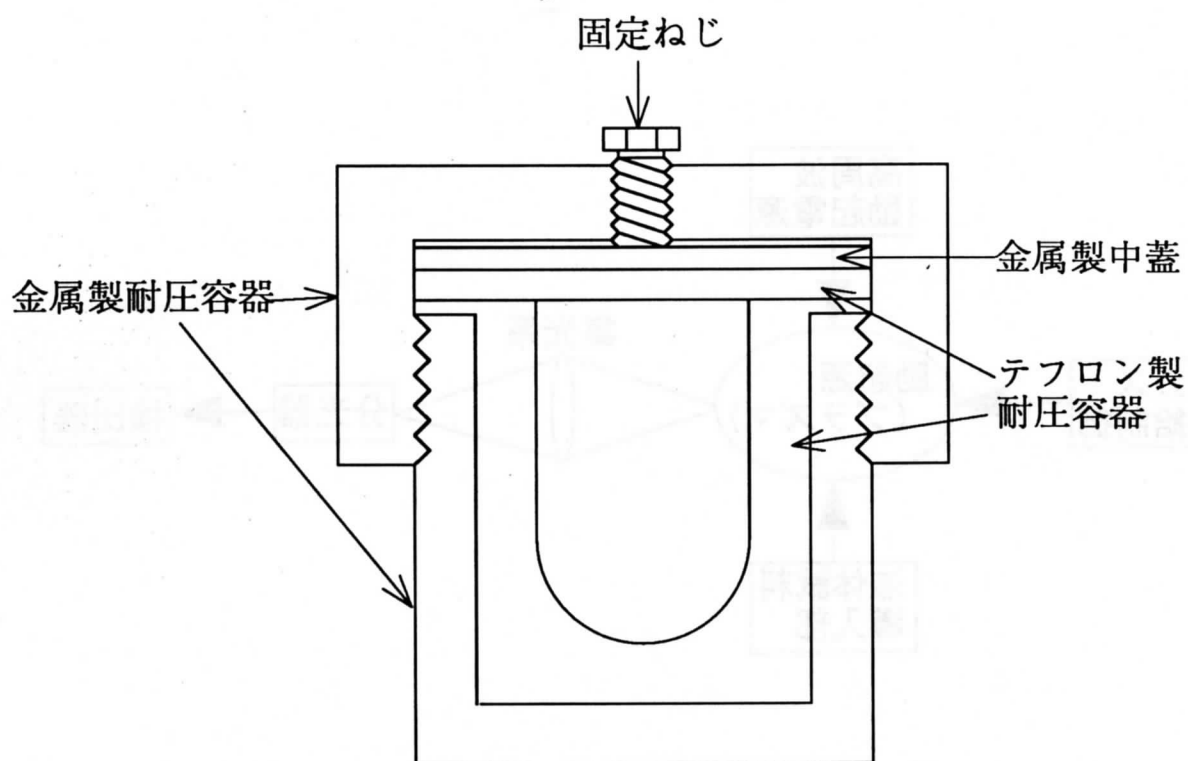


図2-6 Bomb法用の耐圧容器の断面図



## 標準試料溶液の作製

分析は元素濃度と発光強度の関係である検量線を作差しとして実施する。そこでこれを作製するために、分析対象となるLiとTaの標準試料溶液を作製した[付録A]。各溶液の濃度は0.10069 Li mg/mlおよび1.455 Ta mg/mlである。次に、これらの溶液から必要な量を分取してメスフラスコに入れたのち、Yの内標準溶液を5 ml加えた。さらに、溶液に含まれる $\text{H}_2\text{SO}_4$ と $\text{H}_2\text{O}_2$ の量が試料溶液と同じくなるように調整したのち、蒸留水により50 mlに希釈・秤量した。このような手順により、LiとTaに対してそれぞれ濃度を変えた5種類の標準試料溶液を用意した。これらを表2-3に示す。

### (ii) 分析

まず、定量分析の物差しとなる検量線を作製した。用意した標準試料溶液それぞれに対して発光強度を3回ずつ測定してその平均値を求めた。そして濃度と発光強度の関係を最小二乗法により二次曲線として求めた。その結果を図2-7に示す。図の横軸は元素濃度を、縦軸は分析対象元素の発光強度/Yの発光強度を示す。得られた検量線は直線性に優れており、ICP-AES法のダイナミックレンジの広さを示している。

この検量線を用いて未知試料溶液の濃度分析を行なった。測定は各溶液につき3回ずつ行ない、その平均値を求めた。これらを酸化物の濃度に換算した結果を表2-4に示す。一般に、試料中の主元素に対するICP-AES法の測定分解能は0.1~1 mol%程度である。したがって48.0 mol%の試料と49.0 mol%の試料を区別することはできていない。また、コングルエント組成の結晶のLiに対する分析値は仕込値よりも0.8 mol%程度小さい。これはコングルエント組成の定義に反しており、得られた数値に信頼性がない。他の試料の分析値も真値より小さいと思われる。

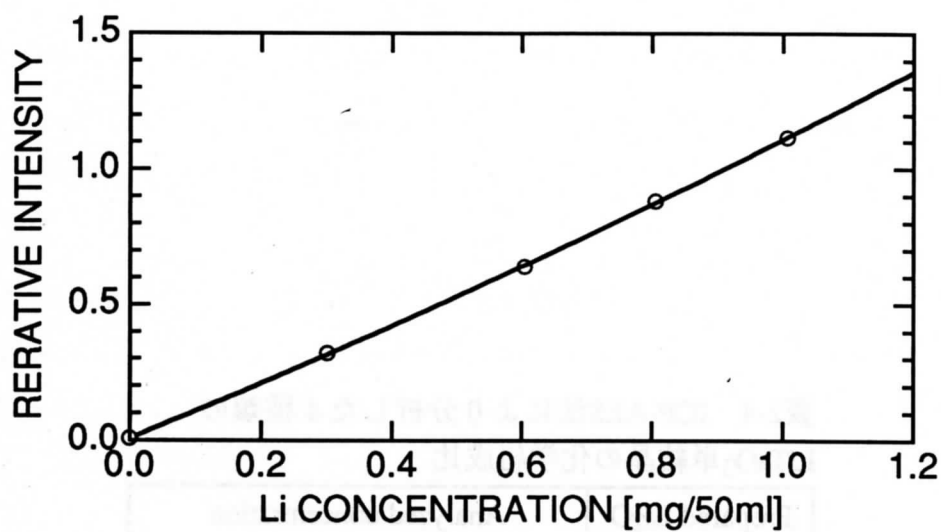
分析を正確に行なえなかった原因は、 $\text{LiTaO}_3$ が難溶性の物質であることや、溶解の程度の判断を目視に頼らざるを得ないことにあると思われる。したがってICP-AES法により $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の化学組成比を精密に分析することは困難であると考ええる。

## XRF法による分析

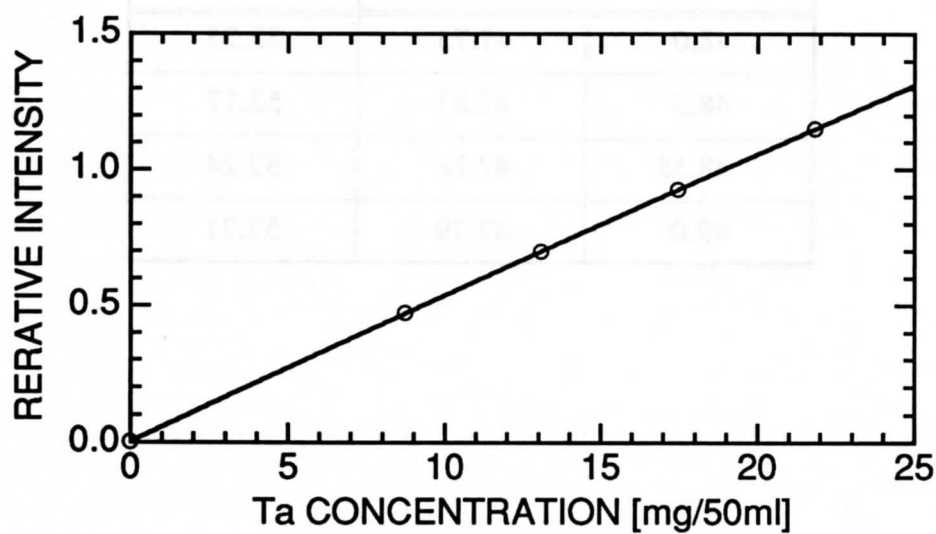
XRF法は他の分析手法に比べて装置の安定性や測定精度に優れていると言われている。また分析対象として固体・粉末や液体といった試料の状態を問わないことや何種類もの元素を同時に分析できること、微量元素の検出が可能であること

表2-3 ICP-AES法による化学組成分析において用意した  
LiおよびTaの標準試料溶液の濃度

	Concentration [mg/50mℓ]				
Li	Li-1	Li-2	Li-3	Li-4	Li-5
	0.0000	0.3021	0.6041	0.8055	1.0069
Ta	Ta-1	Ta-2	Ta-3	Ta-4	Ta-5
	0.000	8.730	13.095	17.460	21.825



(a) Liに対する検量線



(b) Taに対する検量線

図2-7 ICP-AES法による化学組成分析に用いる検量線

表2-4 ICP-AES法により分析した4種類の  
LiTaO<sub>3</sub>単結晶の化学組成比

Prepared Li <sub>2</sub> O [mol%]	Analyzed concentration	
	Li <sub>2</sub> O [mol%]	Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> [mol%]
48.0	47.75	52.25
48.5	47.83	52.17
48.55	47.76	52.24
49.0	47.79	52.21

など優れた点を有している。

分析装置の基本的な構成を図2-8に示す。X線が照射されると、試料中に含まれる各元素の持つ電子が励起される。そのため、その電子の属していた軌道には空孔が生じる。その空孔へ外殻の軌道に属する電子が遷移すると、これらの軌道間のエネルギー差に相当する波長のX線を放出する。このX線は蛍光X線と呼ばれ、元素固有の波長を持つ。分光結晶は格子定数が既知であるのでBraggの回折条件により元素の特定を、また蛍光X線の強度から元素濃度の定量を行なうことができる。

ところで、実際の分析に際しては物質に含まれている元素の相互干渉による蛍光X線の励起・吸収や試料の表面状態の影響を考慮する必要がある。そのため、検量線の作製に必要な標準試料としては分析試料と構成元素や表面状態が同じで、組成比が既知のものが望ましい。しかしこのような物質を準備することは困難である。

本研究においても標準試料を用意できなかったため化学組成比を直接に定量することはできない。そこで蛍光X線強度の大小から化学組成の比較を試みた。XRF法ではLiを分析できないのでTaとOを分析対象とした。化学組成の異なる4種類の基板に対して25回の繰り返し測定を行ない、得られた蛍光X線強度の平均値を求めた。結果を表2-5に示す。表内の $\sigma$ は25回の繰り返し測定における標準偏差であり、 $2\sigma$ は測定分解能に対応する。Ta、Oともに得られた強度の最大値と最小値の差は測定分解能よりも小さい。したがって化学組成比の大小を議論することはできない。

## DTA法によるキュリー温度の測定と化学組成分析

強誘電体においてキュリー温度は強誘電相から常誘電相への転移点にあたり、化学組成比と密接な関係にある。これまで、 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の開発においてYamadaらはそのキュリー温度と化学組成比の関係を検討している[3]。またMiyazawaらやSatoらはキュリー温度の測定からコングルエント組成の決定を試みている[1, 2]。

DTA法はキュリー温度を測定する手法の一つである。この手法は、物質が物理的変化あるいは化学的変化を起こすときにその内部に発生する熱変化を、試料と基準物質との温度差として検出する。測定装置の基本構成を図2-9に示す。粉末状にされた試料は基準物質とともに熱的に均一な電気炉内に設置される。これらは電気炉により一定の速度で加熱あるいは冷却される。この時、これらの温度差

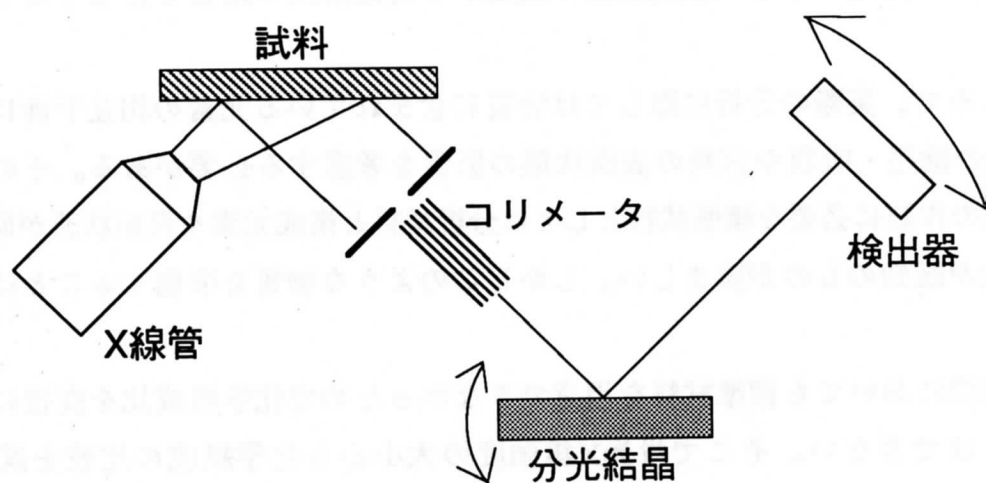


図2-8 XRF装置の基本的な構成

表2-5 XRF法により測定した4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶のTaとOに対する蛍光X線強度

Prepared Li <sub>2</sub> O [mol%]	Intensity	
	Ta [kcps]	O [kcps]
48.0	843.77	1.0043
48.5	843.86	1.0050
48.55	844.07	1.0059
49.0	843.91	1.0062
Max. Difference	0.30	0.0019
2σ	0.35	0.0070



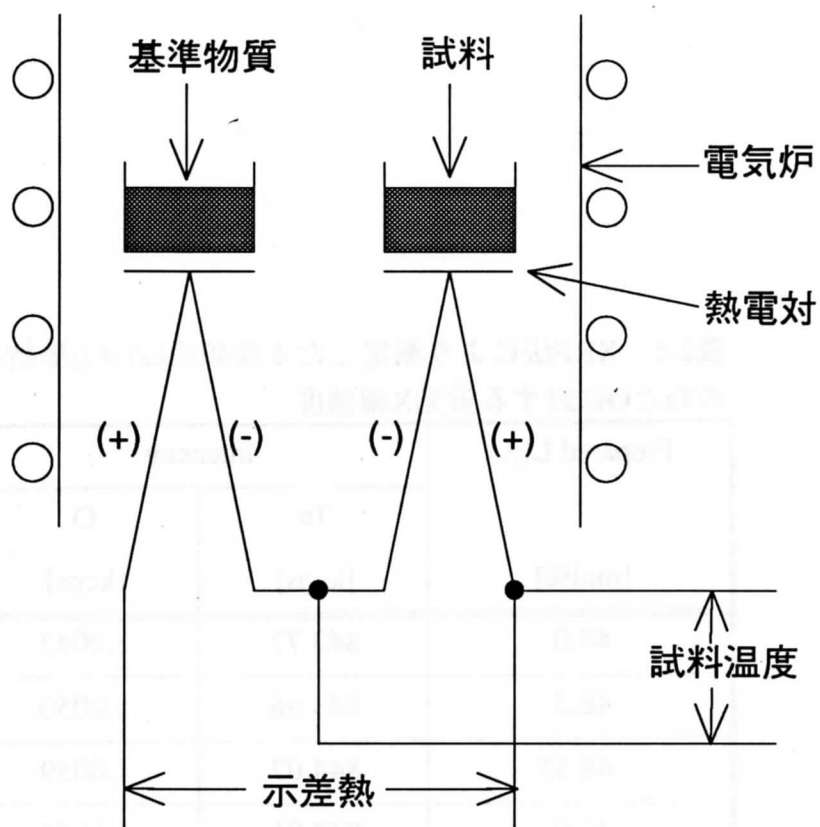


図2-9 DTA装置の基本的な構成

(示差熱) を熱電対により電圧の形で検出する。示差熱を時間の関数として描いたものは示差熱曲線と呼ばれる。強誘電体は常誘電相へと相転移する際に吸熱反応をとともなうため、図2-10に示すように示差熱はいったん低くなる。この極小点が現われた時の試料温度をもってキュリー温度とする。図2-11は $\text{LiTaO}_3$ に対して測定した示差熱曲線の例[4]である。 $\text{LiTaO}_3$ では明確な極小点は得られない。そのため、矢印で示した曲線の立ち上がりを極小点とした。

#### (i) DTA法の測定精度

文献[4]によると、 $\text{LiTaO}_3$ に対するキュリー温度の測定の再現性は $\pm 0.8^\circ\text{C}$ 程度である。この理由として次のようなことが考えられる。まず、前述のように示差熱曲線に明確な極小点が現われないためにキュリー温度の決定精度が悪い。また図2-11のように示差熱曲線はわずかに波打っているためにその立ち上がり点の決定に影響を及ぼす。したがって、DTA法のキュリー温度に対する測定精度は $\pm 1.0^\circ\text{C}$ 程度と考える。

#### (ii) キュリー温度の測定

測定は各組成の試料粉末を3つに分けて、各々について2回ずつ行なった。そして、各組成毎に平均値を求めた。その結果を表2-6に示す。キュリー温度はLiの含有率が増えるにつれて単調に高くなる。48.5 mol%の試料と48.55 mol%の試料に対するキュリー温度の差は、 $\text{LiTaO}_3$ に対するキュリー温度の測定精度 $\pm 1.0^\circ\text{C}$ と同程度である。したがって、これら2つの試料をキュリー温度から区別することは難しい。しかし、48.0、48.5（または48.55）、49.0 mol%の3つの試料に対してはキュリー温度の差が $5\sim 6^\circ\text{C}$ と大きく、化学組成比の相違を十分に判別できていると考える。

#### (iii) 化学組成比への換算

Satoらは図2-12のように $\text{LiTaO}_3$ のキュリー温度と化学組成比の関係を検討している[2]。図中のStarting Materialは結晶の原料である $\text{Li}_2\text{CO}_3$ と $\text{Ta}_2\text{O}_5$ の粉末をある比率で混合したのちに焼結させたものである。したがってこれらの化学組成比は既知である。Starting Materialに対する直線を用いて表2-6に示したキュリー温度を $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度に換算した。その結果を表2-7に示す。48.5 mol%および48.55 mol%の結晶に対しては仕込値と分析値が測定誤差内で一致している。一方、48.0 mol%の結晶の実際の化学組成比は $48.38 \pm 0.03 \text{ Li}_2\text{O mol\%}$ 、49.0 mol%の結晶は $48.67 \pm 0.03 \text{ Li}_2\text{O mol\%}$ とコングルエント組成のほうへ近づいている。これらより、結晶はコングルエン

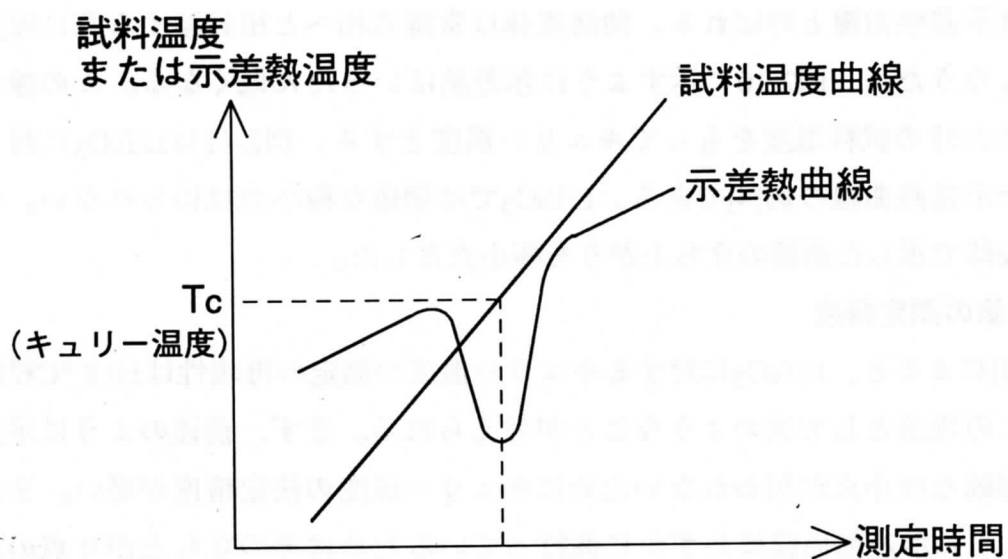


図2-10 キュリー温度の決定方法

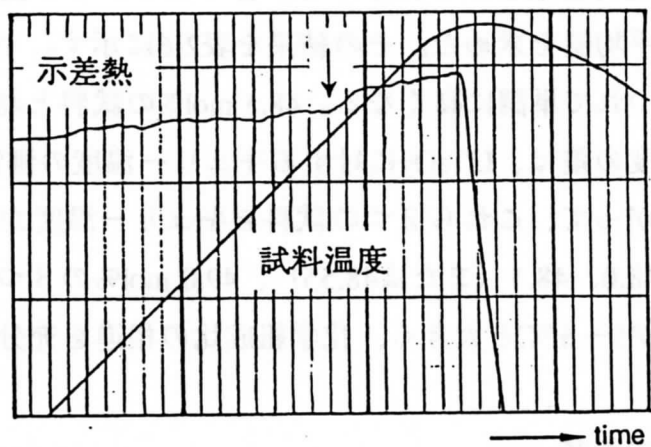


図2-11  $\text{LiTaO}_3$ に対する示差熱曲線

表2-6 DTA法により測定した4種類の  
LiTaO<sub>3</sub>単結晶のキュリー温度

Prepared Li <sub>2</sub> O [mol%]	Curie Temperature [°C]
48.0	596.7
48.5	601.7
48.55	602.5
49.0	607.9

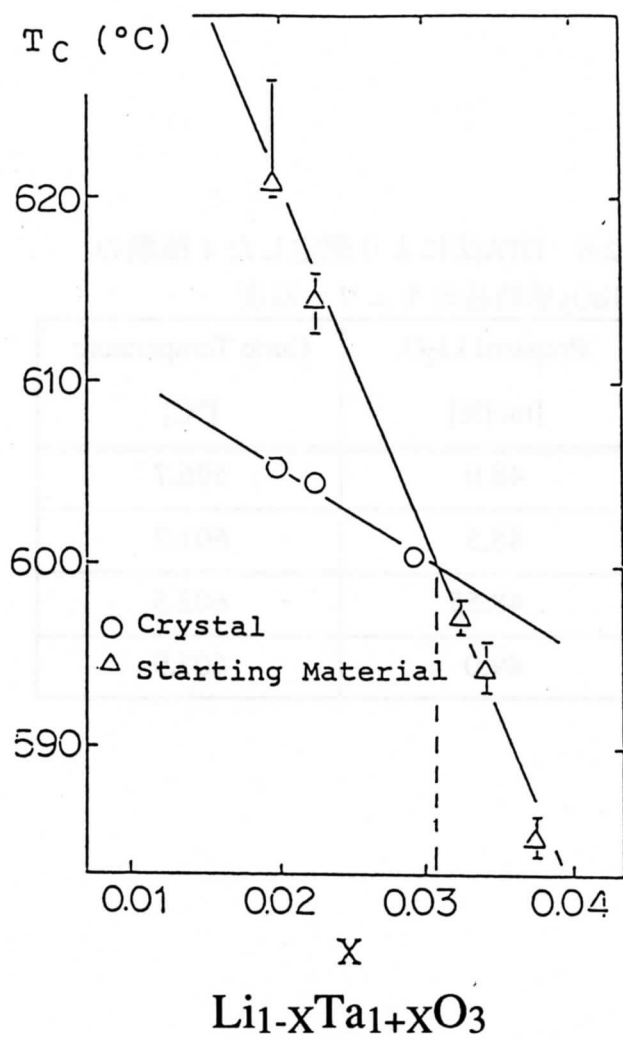


図2-12  $\text{LiTaO}_3$ における化学組成比とキュリー温度の関係[2]

表2-7 表2-6に示したキュリー温度と  
図2-12の換算直線から得た4種類の  
LiTaO<sub>3</sub>単結晶の化学組成比

Prepared Li <sub>2</sub> O [mol%]	Analyzed Li <sub>2</sub> O [mol%]
48.0	48.38±0.03
48.5	48.50±0.03
48.55	48.52±0.03
49.0	48.67±0.03

ト組成に近づくように育成されることがわかる。ここで得た値を2-2節で用意した4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶それぞれのLi<sub>2</sub>O濃度として代表させる。

### 2-3-2 密度の測定

密度は化学組成比を反映するパラメータである。本節では2-2節で作製した各結晶の密度を測定して化学組成比との関係を明らかにする。

#### 空気による浮力の影響を補正したアルキメデスの原理

密度の測定はアルキメデスの原理に基づいて行なう。本研究では一般に知られているこの原理に空気の浮力に対する補正を導入してさらに高精度に測定を行なった。図2-13に密度測定の様式図を示す。図中の $\rho$ は試料の密度、 $V$ は試料の体積、 $M_A$ は空気中における試料の重さ、 $M_W$ は水中における試料の重さ、 $\rho_W$ は水の密度、 $\rho_A$ は空気の密度を示す。 $M_A$ 、 $M_W$ は次のように表わされる。

$$M_A = \rho \cdot V - \rho_A \cdot V \quad (2-1)$$

$$M_W = \rho \cdot V - \rho_W \cdot V \quad (2-2)$$

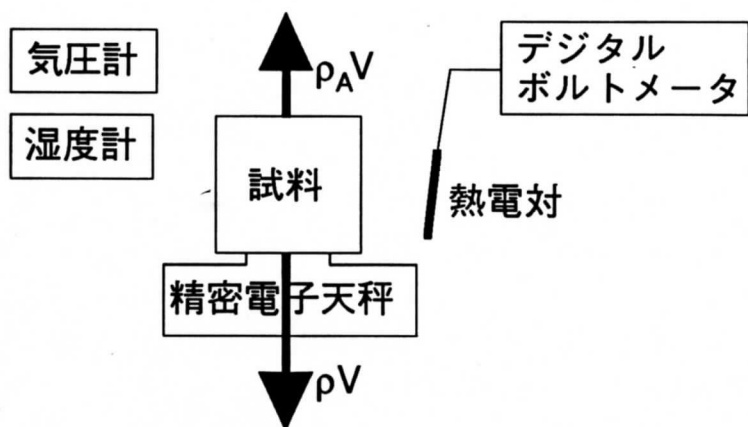
式(2-1)の右辺第二項が空気の浮力に対する補正項である。式(2-1)、(2-2)から $V$ を消去すると、次式が得られる。

$$\rho = \frac{M_A}{M_A - M_W} \rho_W - \frac{M_W}{M_A - M_W} \rho_A \quad (2-3)$$

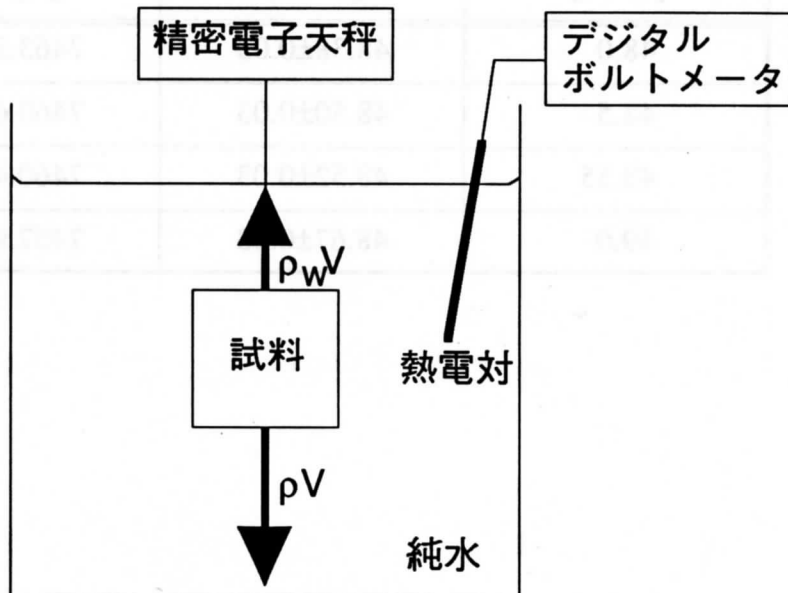
すなわち、 $M_A$ 、 $M_W$ 、 $\rho_W$ 、 $\rho_A$ を測定することにより式(2-3)から試料の密度 $\rho$ を求めることができる。 $M_A$ と $M_W$ は精密電子天秤を用いて測定する。 $\rho_W$ は $M_W$ の測定の際に用いる純水の温度を熱電対とデジタルボルトメーターにより測定して文献[5]から求める。 $\rho_A$ は $M_A$ の測定時における気圧と気温および湿度を測定して文献[6]から求める。

#### 測定結果

2-2節で用意した4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶それぞれの平均的な密度を測定する。この試料としてはZ-cut基板が望ましいが、その重量が精密電子天秤の測定制限重量よりも重いために用いることはできなかった。そこで、X-cut基板を試料として測定を行なった。測定結果を表2-8に示す。また図2-14にLi<sub>2</sub>O濃度と密度の関係を示



(a) 空気中における試料の重さの測定



(b) 水中における試料の重さの測定

図2-13 密度測定の様式図



表2-8 化学組成比の異なる4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶に対する  
密度の測定結果

Prepared Li <sub>2</sub> O [mol%]	Analyzed Li <sub>2</sub> O [mol%]	Density [kg/m <sup>3</sup> ]
48.0	48.38±0.03	7463.2±0.3
48.5	48.50±0.03	7460.6±0.3
48.55	48.52±0.03	7460.4±0.2
49.0	48.67±0.03	7457.9±0.2

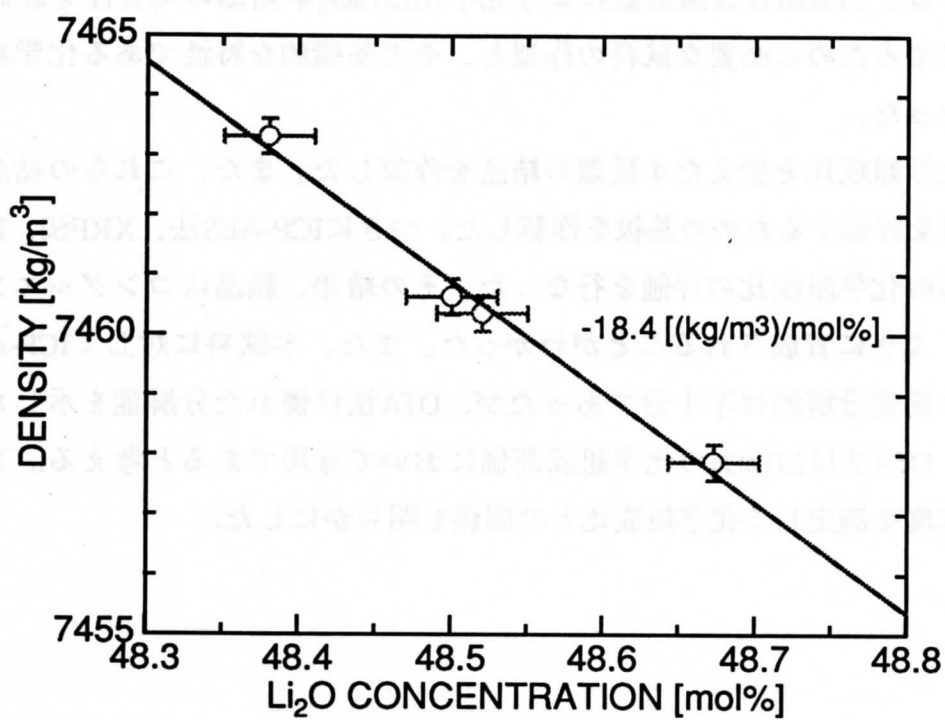


図2-14  $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の密度の化学組成比依存性

す。図中の直線は最小二乗法による近似直線である。 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度が大きくなると密度は $18.4 \text{ (kg/m}^3\text{)}/\text{mol}\%$ の割合で単調に小さくなる。

## 2-4 あとがき

本章では、LFB超音波顕微鏡により光学用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の均質性を評価する手法を確立するために必要な試料の作製と、その基礎的な特性である化学組成の評価を行なった。

まず化学組成比を変えた4種類の結晶を作製した。また、これらの結晶よりその均質性を評価するための基板を作製した。つぎにICP-AES法、XRF法、DTA法により結晶の化学組成比の評価を行なった。その結果、結晶はコングルエント組成に近づくように育成されることがわかった。また、本試料に対してICP-AES法とXRF法の測定分解能は不十分であったが、DTA法は優れた分解能を示した。したがって、DTA法は $\text{LiTaO}_3$ の化学組成評価において有用であると考ええる。また、各結晶の密度を測定して化学組成比との関係を明らかにした。

### 3. 弾性的均質性の評価

#### 3-1 まえがき

本章では、直線集束ビーム (Line Focus Beam : LFB) 超音波顕微鏡システム[7]を第2章で作製した試料の均質性の評価に適用する。本システムは水と試料の境界面上に漏洩弾性表面波 (Leaky Surface Acoustic Wave : LSAW) を励振し、その伝搬特性である位相速度と伝搬減衰を測定する。これらは材料の化学的・物理的特性を反映していると考えられる[4,8-13]。したがって、試料内におけるこれらの分布を詳細に測定することにより結晶の均質性を定量的に評価できると考える。

3-2節では用意した試料の音響的な均質性を評価する。まず、この評価の基礎となるLFB超音波顕微鏡による音響特性の測定原理およびシステムの構成を述べる。次に、基本的な音響特性として各試料におけるLSAW速度の伝搬方向依存性を測定する。また、結晶の育成方向および直径方向におけるLSAW速度の分布を測定して弾性的な均質性を評価する。3-3節では結晶の育成方向における密度の分布を測定する。そしてこの結果と3-2節で測定したLSAW速度との比較を行なうことにより、これらの分布が化学組成の変化を捉えていることを示す。

#### 3-2 音響特性の測定による評価

##### 3-2-1 直線集束ビーム超音波顕微鏡による音響特性の測定原理

LFB超音波顕微鏡による音響特性の測定の要は、薄膜トランスジューサと音響レンズからなる超音波デバイスである。図3-1にその概観を示す。ロッドの片端面にはトランスジューサが作製される。もう一方の端面は円筒形のレンズに形成される。トランスジューサから励振された平面超音波はこのレンズの効果で図3-2に示すようにくさび状に集束される。この超音波は水を介して試料面上に照射され、試料面上にLSAWを一方向に励振する。ここで音響レンズと試料面との距離 $z$ を焦点距離よりも小さくする (デフォーカス) 操作を行なうと、トランスジューサの電氣的出力 $V$ は変化する。この変化を距離 $z$ の履歴として描くと、図3-3に示すような $V(z)$ 曲線と呼ばれる一定の周期をもつ波形が得られる。この曲線は材料固有の形状を示し、LSAWの伝搬特性に関する情報を含んでいる。その干渉周期 $\Delta z$ はLSAWの位相速度を、振幅の変化は伝搬減衰を反映している。

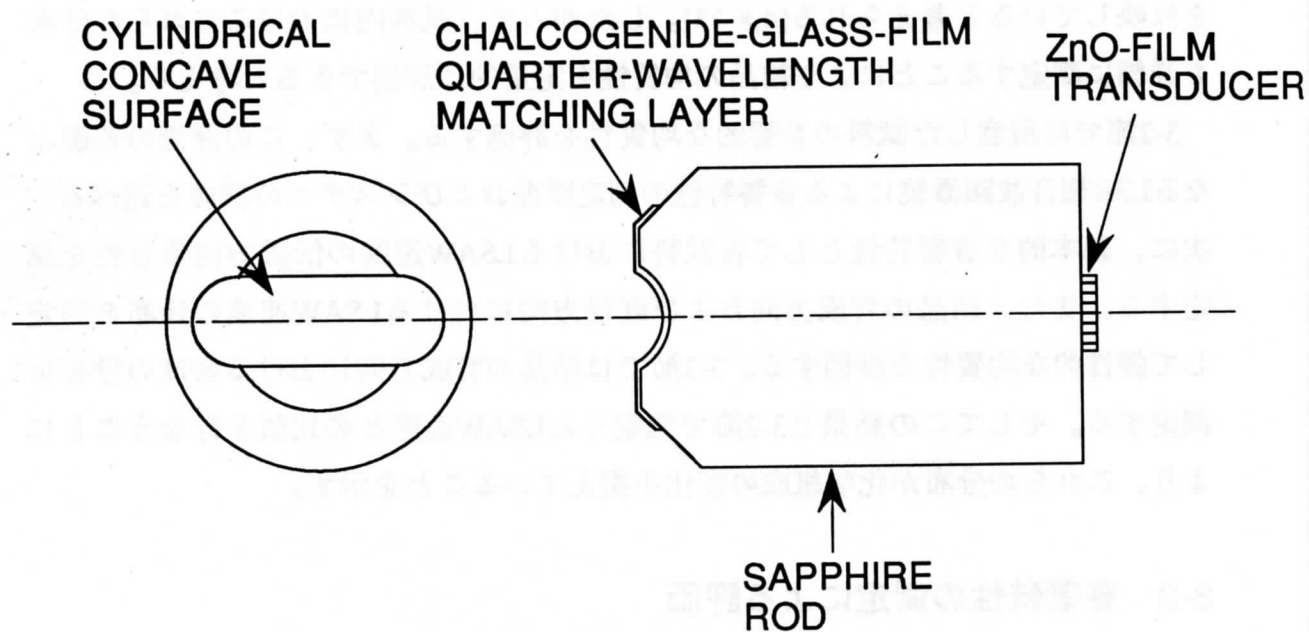


図3-1 LFB超音波デバイスの概観

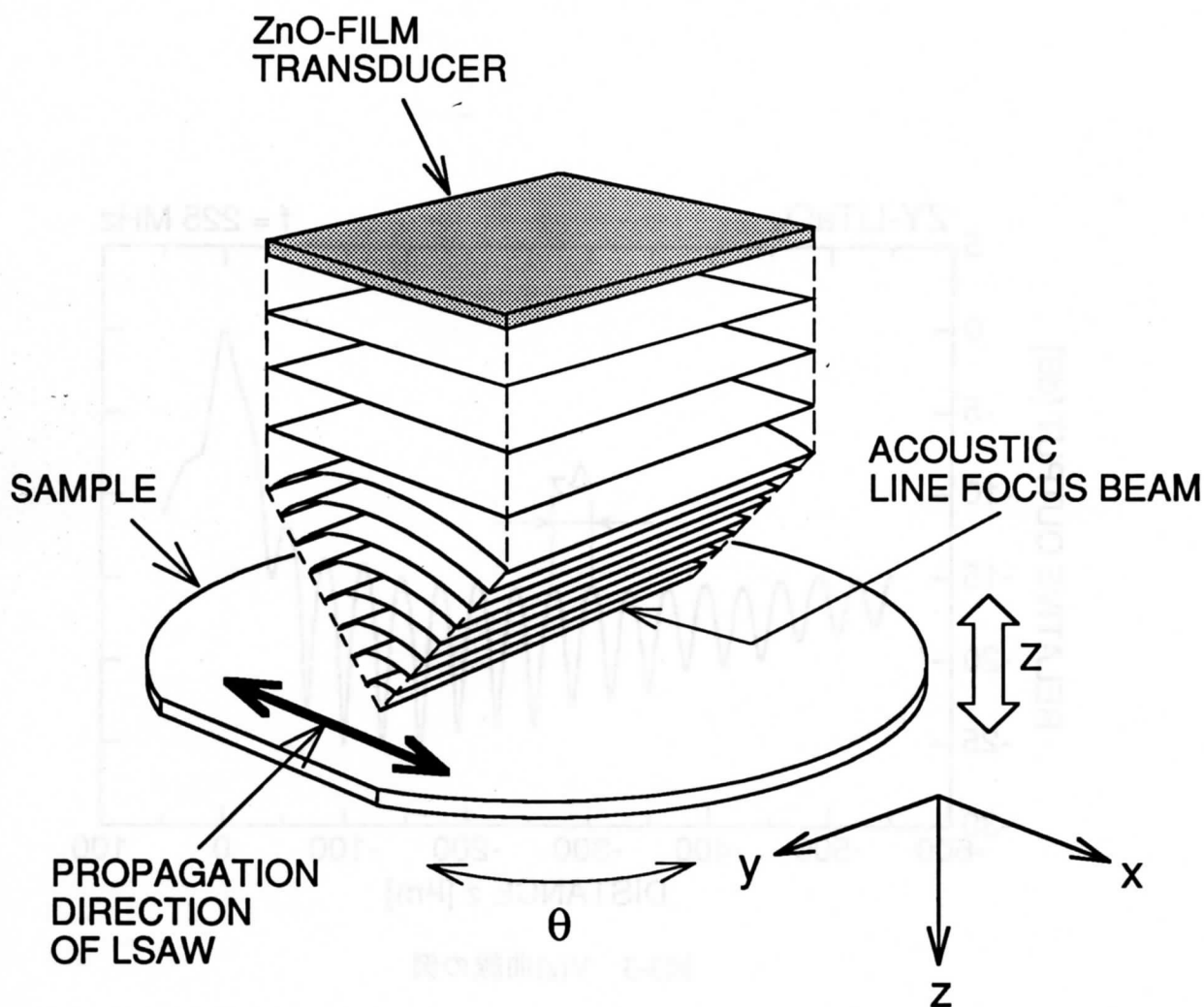


図3-2 直線集束ビームの概念図

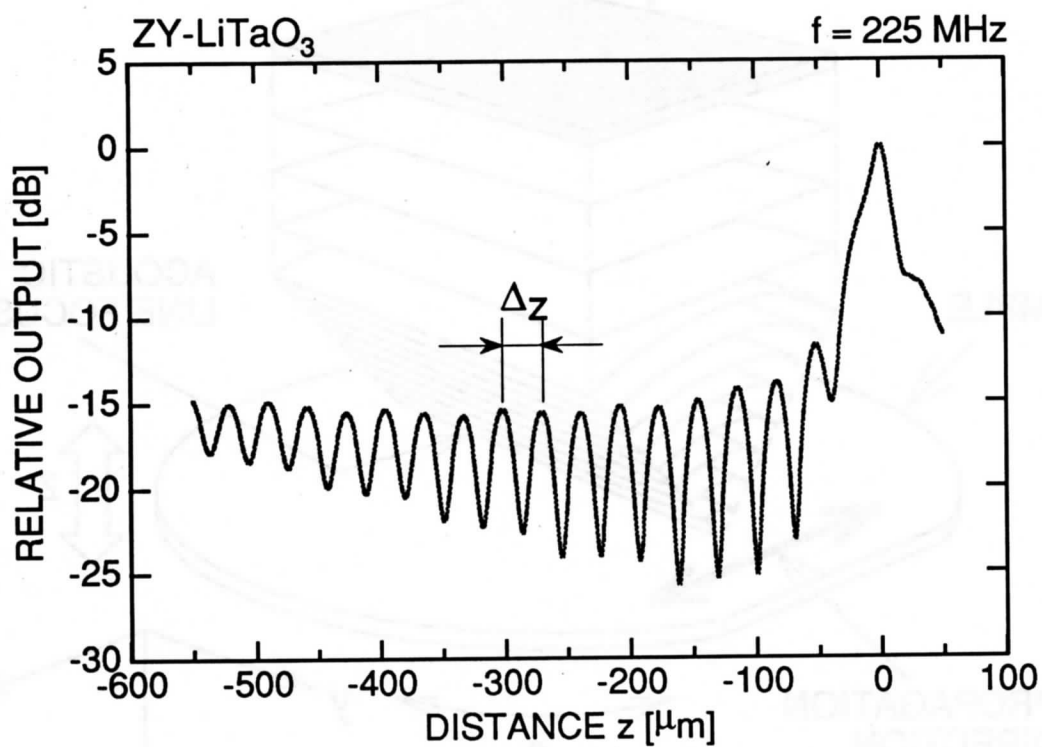


図3-3  $V(z)$ 曲線の例

### 3-2-1-1 V(z)曲線の形成原理および解析法

図3-4に超音波デバイスと試料系の断面図を示す。図は試料の表面の位置を集束超音波の焦点位置 ( $z=0$ ) からデフォーカス操作した状態 ( $z<0$ ) を示している。試料の表面が焦点位置にあるときは、試料面で反射した超音波の全ての空間周波数成分がトランスジューサの出力に寄与する。しかし、デフォーカス操作をした状態では状況が異なり、#0と#1の成分の寄与が支配的となる。#0は試料の表面に垂直に入射し、同じ経路をたどってトランスジューサに戻る成分である。#1は式(3-1)で表わされるSnellの法則を満たす臨界角 $\theta_{\text{LSAW}}$ で試料の表面に入射して水との境界面をLSAWとして伝搬し、図に示した経路でトランスジューサに戻る成分である。

$$\theta_{\text{LSAW}} = \sin^{-1} \frac{V_W}{V_{\text{LSAW}}} \quad (3-1)$$

ここで、 $V_W$ は水中を伝搬する縦波超音波の速度を、 $V_{\text{LSAW}}$ はLSAWの位相速度を表わす。

$z$ を変化させると#0と#1の位相差が変化して干渉する。このためにトランスジューサの出力は周期的に変化して図3-3に示したような $V(z)$ 曲線が得られる。この干渉周期 $\Delta z$ は幾何学的な考察から式(3-2)で表わされる。

$$\Delta z = \frac{V_W}{2f(1 - \cos \theta_{\text{LSAW}})} \quad (3-2)$$

ここで、 $f$ は超音波周波数を表わす。式(3-1)と(3-2)より、LSAW速度と干渉周期 $\Delta z$ の関係は式(3-3)のように表わされる。

$$V_{\text{LSAW}} = \frac{V_W}{\sqrt{1 - \left(1 - \frac{V_W}{2f \cdot \Delta z}\right)^2}} \quad (3-3)$$

$\Delta z$ は次に示す $V(z)$ 曲線解析法[7]に基づいて求める。 $V_W$ は $V(z)$ 曲線の測定時にカプラとして用いる水の温度を測定して文献[14]より求める。

図3-5(a)はZ-cut LiTaO<sub>3</sub>基板に対して得られた $V(z)$ 曲線である。この曲線は#0と#1の干渉成分 $V_I(z)$ と音響レンズの特性 $V_L(z)$ を含んでいる。そこで式(3-4)のような演算を行うことにより $V_L(z)$ を除去して $V_I(z)$ を取り出す。



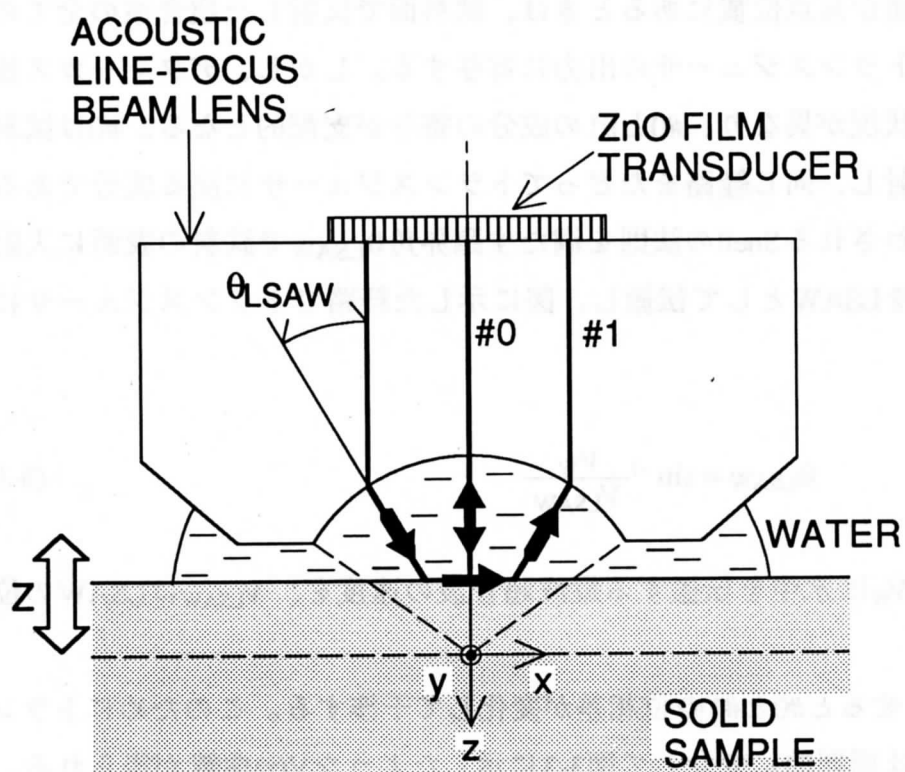


図3-4 V(z)曲線の形成原理図

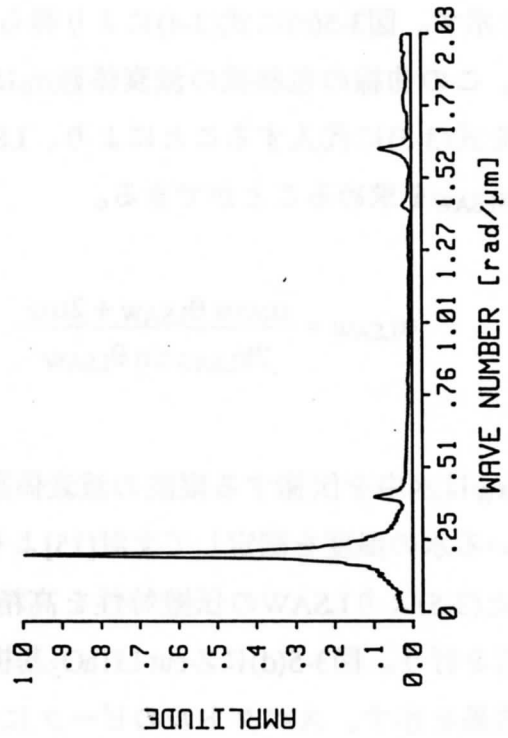
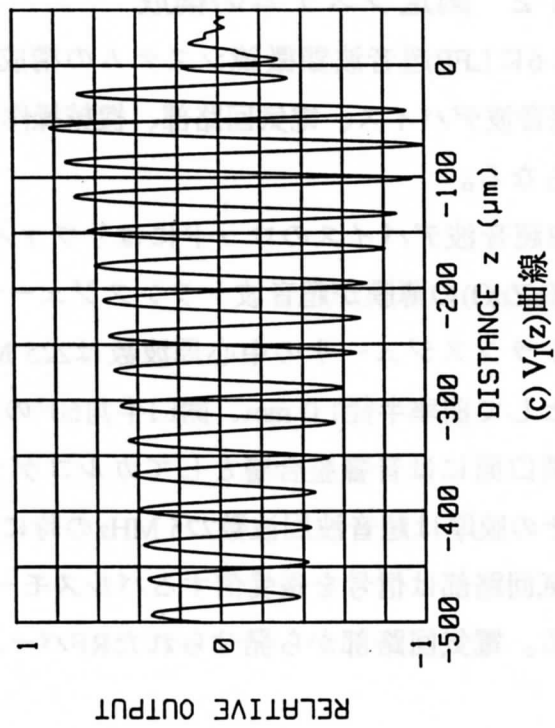
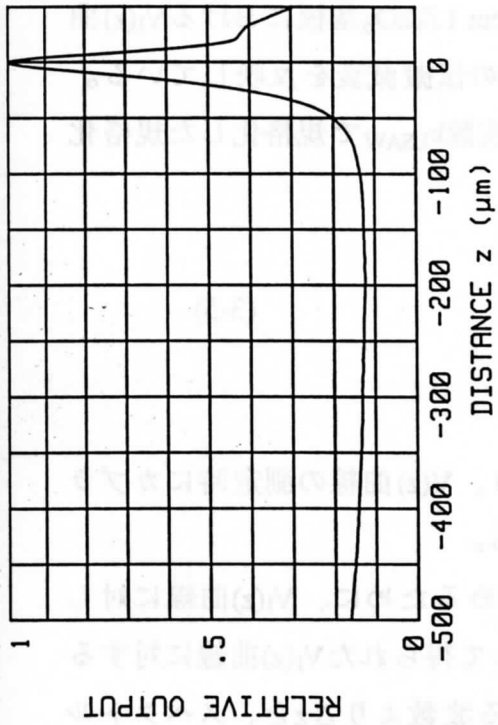
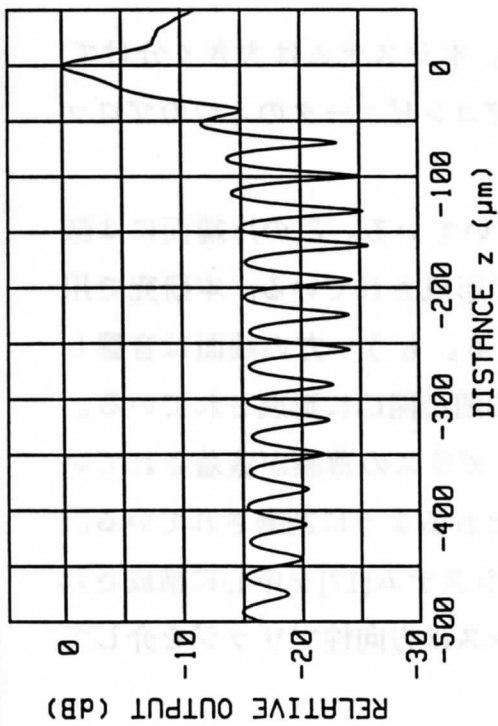


図3-5 FFTを用いた $V(z)$ 曲線解析法

$$V_I(z) = V(z) - V_L(z) \quad (3-4)$$

$V_L(z)$ 曲線には水との境界面にLSAWを励振しない物質（例えばテフロン）に対して測定した $V(z)$ 曲線を近似的に用いる。図3-5(b)にテフロンに対する測定から得た $V(z)$ 曲線を示す。図3-5(c)に式(3-4)により得られたZ-cut LiTaO<sub>3</sub>基板における $V_I(z)$ 曲線を示す。この曲線の包絡線の減衰係数 $\alpha_0$ はLSAWの伝搬減衰を反映している。求めた $\alpha_0$ を式(3-5)に代入することにより、LSAWの波数 $k_{\text{LSAW}}$ で規格化した規格化伝搬減衰 $\alpha_{\text{LSAW}}$ を求めることができる。

$$\alpha_{\text{LSAW}} = \frac{\alpha_0 \cos \theta_{\text{LSAW}} + 2\alpha_w}{2k_{\text{LSAW}} \sin \theta_{\text{LSAW}}} \quad (3-5)$$

ここで、 $\alpha_w$ は水中を伝搬する縦波の減衰係数であり、 $V(z)$ 曲線の測定時にカプラとして用いる水の温度を測定して文献[15]より求める。

式(3-3)と(3-5)よりLSAWの伝搬特性を高精度に求めるために、 $V_I(z)$ 曲線に対してFFT解析を行う。図3-5(d)にZ-cut LiTaO<sub>3</sub>基板に対して得られた $V_I(z)$ 曲線に対するFFT解析結果を示す。スペクトルのピークに対応する波数より $\Delta z$ を、スペクトル幅より $\alpha_0$ を求めてLSAWの伝搬特性を決定する[16]。

### 3-2-1-2 測定システムの構成

図3-6にLFB超音波顕微鏡システムの構成を示す。本システムは大きく分けてLFB超音波デバイス、電気回路部、機械操作部およびコンピュータの4つのブロックからなる。

LFB超音波デバイスのロッドにはサファイヤを用いている。この片端面には酸化亜鉛(ZnO)の薄膜が超音波トランスジューサとして形成されている。本研究で用いたトランスジューサの中心周波数は225 MHzである。もう一方の端面は音響レンズとして曲率半径1.0 mm、開口半角60°の円筒状の凹型開口に形成されている。その開口面には音響整合層としてカルコゲナイド・ガラスの薄膜が蒸着されている。その膜厚は超音波周波数225 MHzの時に整合がとれるように制御されている。

電気回路部は信号を送受信するパルスモード測定システム[17]を中心に構成されている。電気回路部から発せられたRFバーストパルスは方向性ブリッジを介して

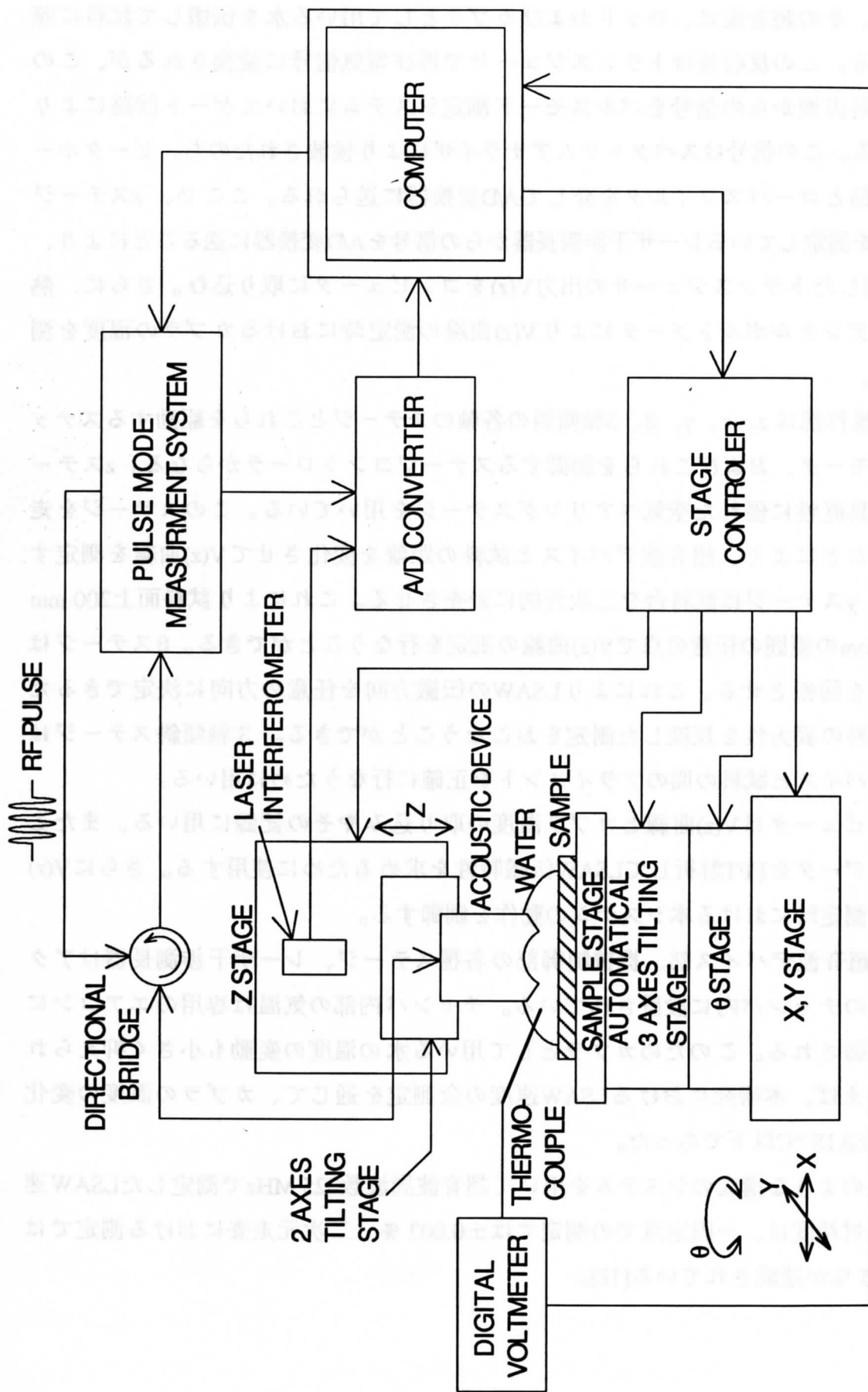


図3-6 直線集束ビーム超音波顕微鏡システムの構成

LFB超音波デバイスに送られる。このパルスはトランスジューサで超音波に変換される。その超音波は、ロッドおよびカプラとして用いる水を伝搬して試料に照射される。この反射波はトランスジューサで再び電気信号に変換されるが、このうち試料表面からの信号をパルスモード測定システムにおいてゲート回路により抽出する。この信号はスペクトラムアナライザにより検波されたのち、ピークホールド回路とローパスフィルタを介してA/D変換器に送られる。ここで、zステージの位置を測定しているレーザ干渉測長器からの信号をA/D変換器に送ることにより、zと同期したトランスジューサの出力 $V(z)$ をコンピュータに取り込む。さらに、熱電対とデジタルボルトメータにより $V(z)$ 曲線の測定時におけるカプラの温度を測定する。

機械操作部はz、x、y、 $\theta$ 、3軸傾斜の各軸のステージとこれらを駆動するステッピングモータ、およびこれらを制御するステージコントローラからなる。zステージには真直性に優れた空気ベアリングステージを用いている。このステージを走査することにより、超音波デバイスと試料の距離を変化させて $V(z)$ 曲線を測定する。x、yステージは試料台を二次元的に走査させる。これにより試料面上200 mm  $\times$  200 mmの範囲の任意の点で $V(z)$ 曲線の測定を行なうことができる。 $\theta$ ステージは試料台を回転させる。これによりLSAWの伝搬方向を任意の方向に決定できるため、材料の異方性を反映した測定をおこなうことができる。3軸傾斜ステージは音響デバイスと試料の間のアライメントを正確に行なうために用いる。

コンピュータは $V(z)$ 曲線とカプラ温度の取り込みやその記録に用いる。またこれらのデータをFFT解析してLSAW伝搬特性を求めるために使用する。さらに $V(z)$ 曲線の測定時における本システムの動作を制御する。

LFB超音波デバイス部、機械制御部の各種ステージ、レーザ干渉測長器はアクリル製のチャンバ内に設置されている。チャンバ内部の気温は専用のエアコンにより制御される。このためカプラとして用いる水の温度の変動も小さく抑えられる。例えば、本研究におけるLSAW速度の全測定を通じて、カプラの温度の変化は $23.0 \pm 0.18$  °C以下であった。

以上のような構成のシステムを用いて超音波周波数225 MHzで測定したLSAW速度の相対精度は、一固定点での測定では $\pm 0.002$  %、二次元走査における測定では $\pm 0.005$  %が達成されている[18]。

### 3-2-2 漏洩弾性表面波速度の測定

本節では、第2章で作製した4種類の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶に対してLFB超音波顕微鏡によるLSAW速度の測定を行ない、結晶の均質性を評価する。まず基本的な音響特性として各試料におけるLSAW速度の伝搬方向依存性を測定する。次に結晶の育成方向および直径方向におけるLSAW速度の分布を測定して弾性的な均質性を評価する。

本論文において示されるLSAW速度はすべて超音波周波数225 MHzにおいて測定した値である。その値はGadolinium Gallium Garnet (GGG) 単結晶を標準試料として校正[19]されている。また、Y-cut基板は2-2節で示したように結晶面と試料面がずれているので、この影響に関する補正を行なった。

#### 3-2-2-1 伝搬方向依存性

化学組成の異なる4つの結晶の基本的な音響特性を把握するために、+X面、+Y面、+Z面におけるLSAW速度の伝搬方向依存性を測定した。測定位置と用いた基板を図3-7に示す。LSAWの伝搬方向は $200^\circ$ の範囲を $1^\circ$ ずつ変化させた。+X面、+Y面、+Z面に対する測定結果をそれぞれ図3-8の(a)、(b)、(c)に示す。 $\text{LiTaO}_3$ は三方晶系の3mに属しており、その結晶対称性を反映した結果が得られた。また、LSAW速度はLiの含有率が増加するにつれてその対称性を保ったまま大きくなる。

#### 3-2-2-2 単結晶内における分布

本節では用意したX-cut、Y-cut、Z-cut基板におけるLSAW速度の分布を測定することにより、化学組成の異なる4種類の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の均質性を評価する。各基板におけるLSAW速度の測定位置を図3-9に破線で示す。また各々の測定領域の長さを表3-1に示す。

測定領域(2)と(3)および(3)と(4)の間隔 $l$ は、Y1、Y2、Y3の切り出し間隔と等しい。測定はこれらの領域において1 mmごとに位置を変えながら行なった。

#### Z-cut基板

##### (i) 育成方向

図3-9の(1)の領域においてLSAW速度の分布を測定した。LSAWの伝搬方向は結晶X軸方向および結晶Y軸方向とした。測定結果を図3-10に示す。各結晶に注目すると、48.0 mol%の結晶では結晶の上部から下部へ移るにつれてLSAW速度は徐々

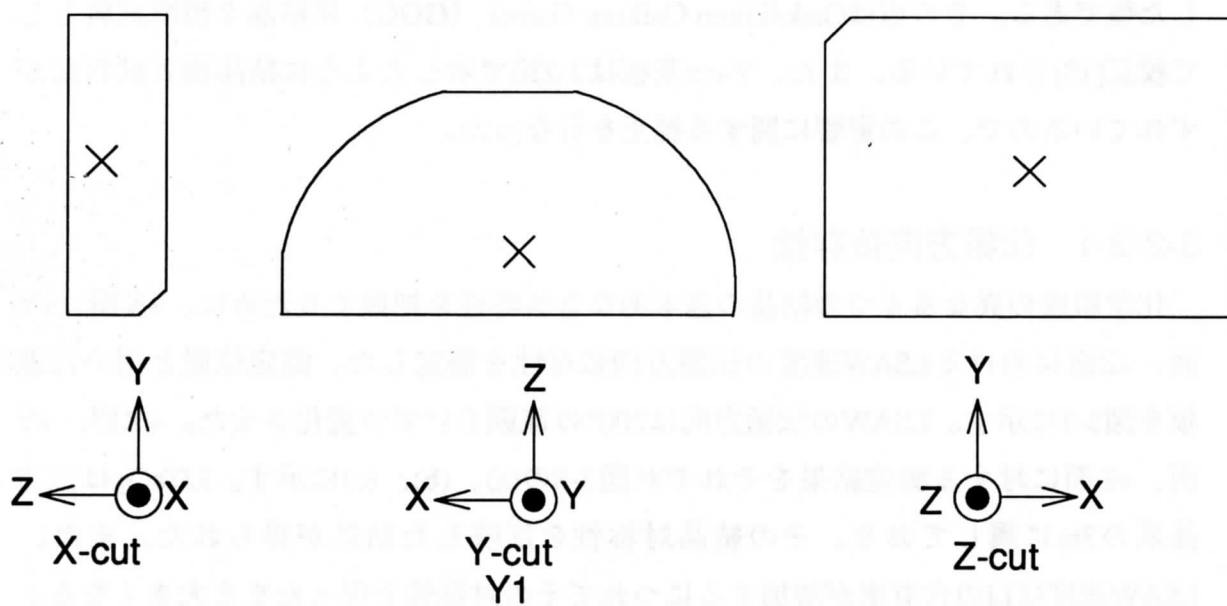
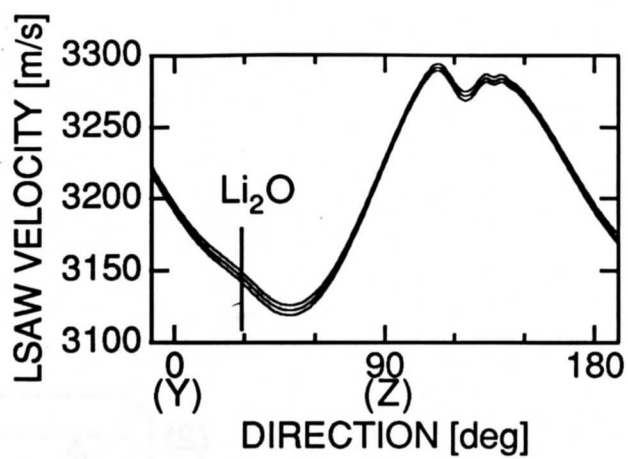
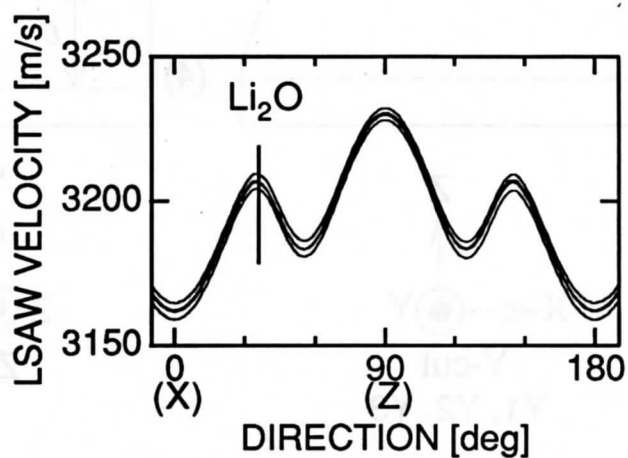


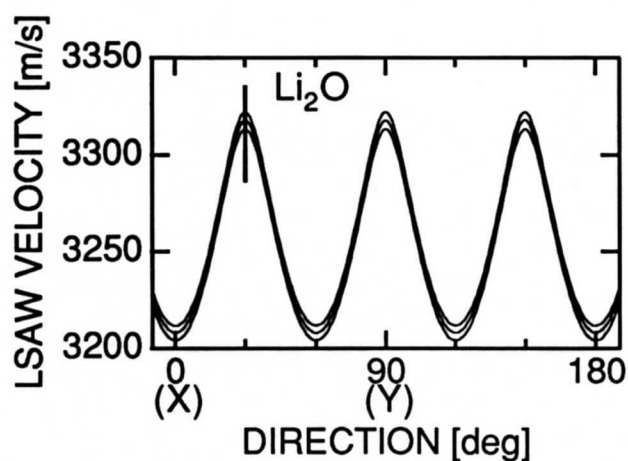
図3-7 LSAW速度の伝搬方向依存性を測定した基板と測定位置



(a)X-cut基板



(b)Y-cut基板



(c)Z-cut基板

図3-8 化学組成比の異なる4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶に対するLSAW速度の伝搬方向依存性



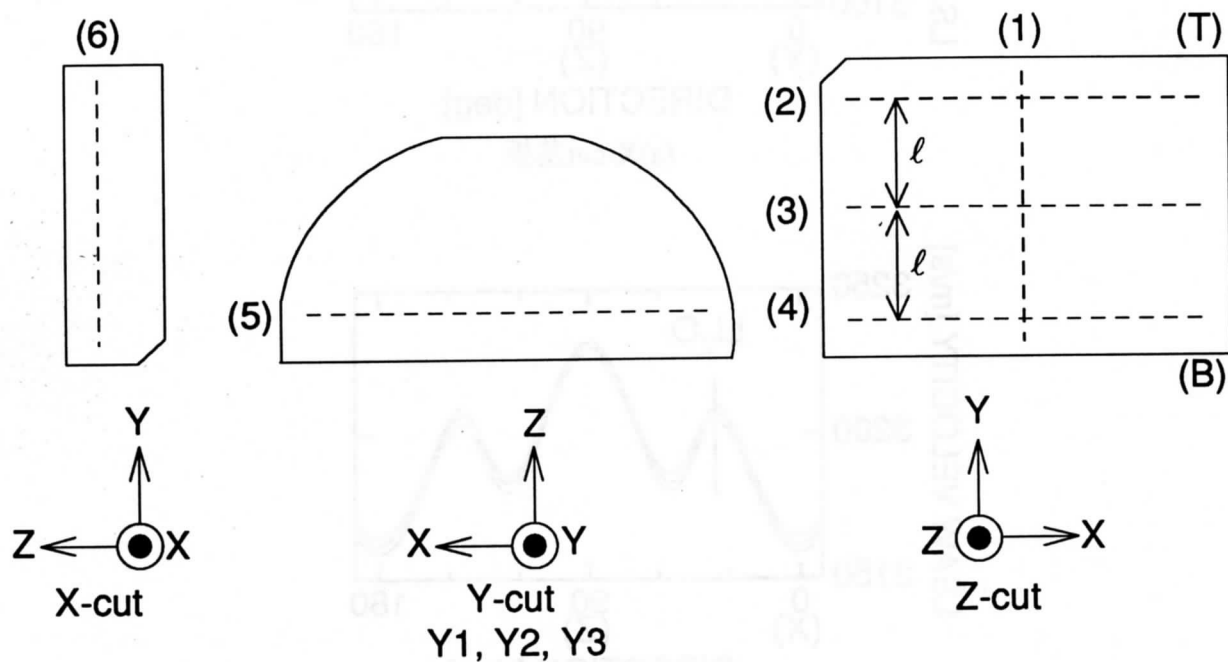
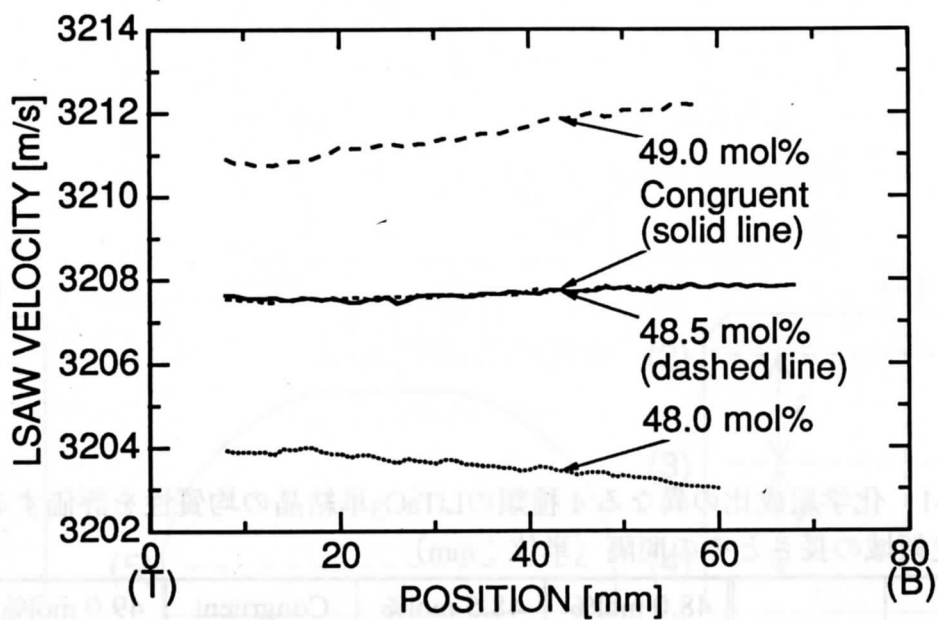


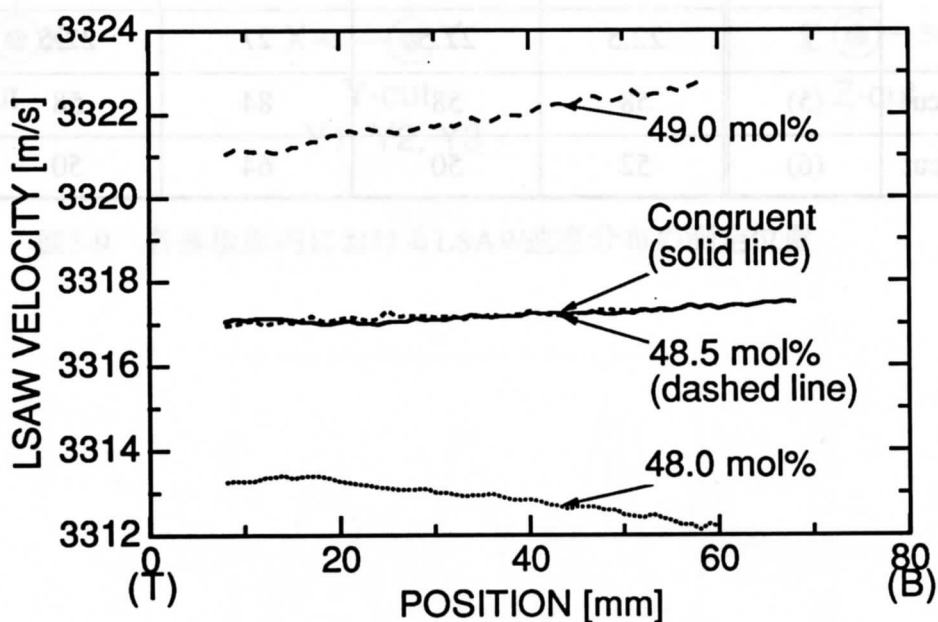
図3-9 各基板面内におけるLSAW速度分布の測定位置

表3-1 化学組成比の異なる4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶の均質性を評価するための測定領域の長さとその間隔（単位：mm）

		48.0 mol%	48.5 mol%	Congruent	49.0 mol%
Z-cut	(1)	52	48	60	50
	(2)～(4)	56	54	76	56
	$\ell$	22.5	22.5	27	22.5
Y-cut	(5)	58	58	84	58
X-cut	(6)	52	50	64	50



(a) X軸方向伝搬



(b) Y軸方向伝搬

図3-10 化学組成比の異なる4種類のZ-cut LiTaO<sub>3</sub>の結晶育成方向におけるLSAW速度の分布の測定結果

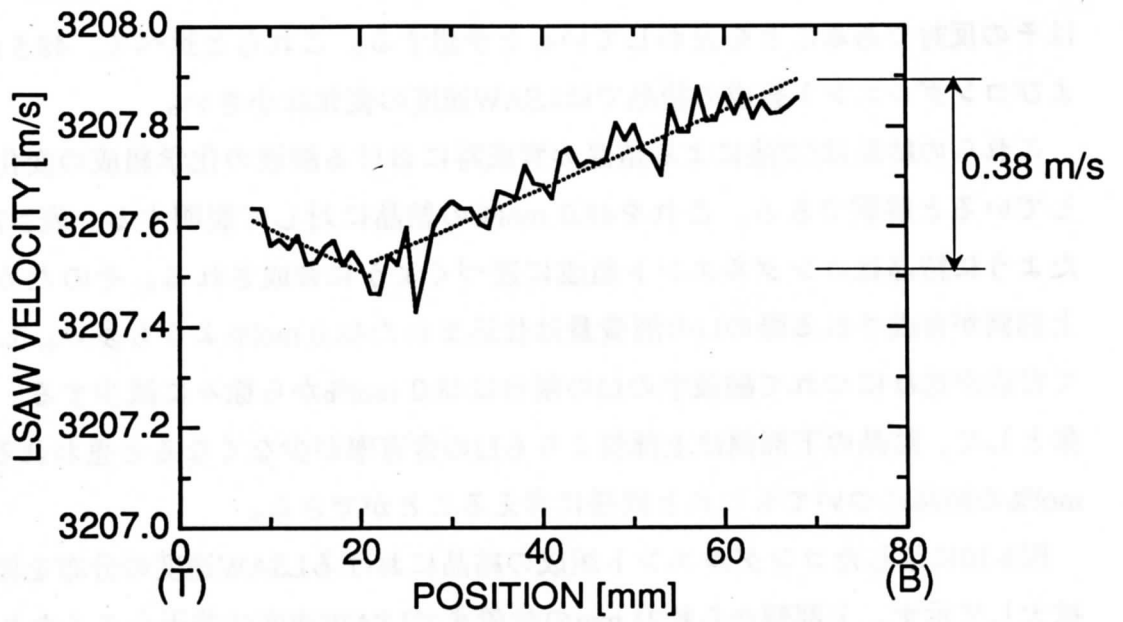
に小さくなる。一方、49.0 mol%の結晶では反対の傾向を示す。これは、48.0 mol%の結晶ではLiの含有率が上部側に比べて下部側が少なく、49.0 mol%の結晶ではその反対であることを表わしていると予想する。これらと比べて、48.5 mol%およびコングルエント組成の結晶ではLSAW速度の変化は小さい。

これらの結果はCZ法による結晶の育成時における融液の化学組成の変化を反映していると解釈できる。これを48.0 mol%の結晶に対して説明する。表2-7に示したように結晶はコングルエント組成に近づくように育成される。そのため結晶の上部側が育成される際のLiの消費量は仕込まれた48.0 mol%よりも多い。したがって育成が進むにつれて融液中のLiの割合は48.0 mol%から徐々に減少する。その結果として、結晶の下部側は上部側よりもLiの含有率が少なくなると思われる。49.0 mol%の結晶についてもこれと同様に考えることができる。

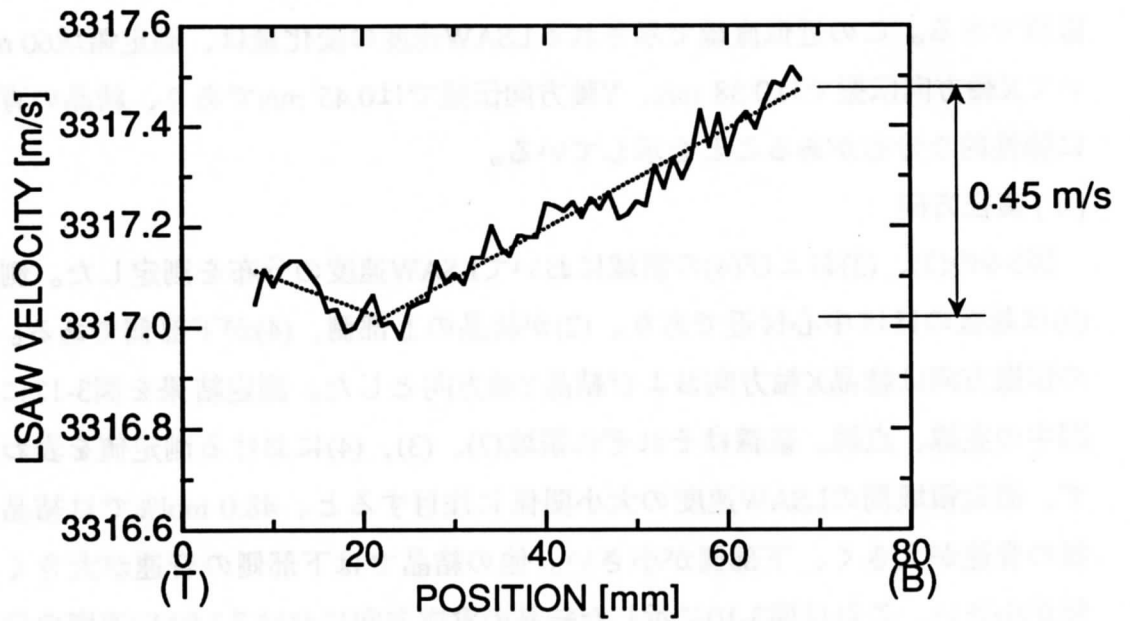
図3-10に示したコングルエント組成の結晶におけるLSAW速度の分布を図3-11に拡大して示す。上部側から約21 mmの位置までLSAW速度は若干小さくなり、その後は単調に大きくなる傾向にある。図中の点線は、上部側から21 mmの位置までの領域およびそれより下部側の領域の各々において最小二乗法により求めた近似直線である。この近似直線で示されるLSAW速度の変化量は、測定領域60 mmにおいてX軸方向伝搬では0.38 m/s、Y軸方向伝搬では0.45 m/sであり、結晶の育成方向に弾性的な分布があることを示している。

## (ii) 直径方向

図3-9の(2)、(3)および(4)の領域においてLSAW速度の分布を測定した。測定領域(3)は基板のほぼ中心付近であり、(2)が結晶の上部側、(4)が下部側である。LSAWの伝搬方向は結晶X軸方向および結晶Y軸方向とした。測定結果を図3-12に示す。図中の実線、点線、破線はそれぞれ領域(2)、(3)、(4)における測定値を表わす。まず、測定領域間のLSAW速度の大小関係に注目すると、48.0 mol%では結晶の上部側の音速が大きく、下部側が小さい。他の結晶では下部側の音速が大きく、上部側が小さい。これは図3-10に示した結晶の育成方向におけるLSAW速度の分布と対応している。次に、それぞれの測定領域に注目する。コングルエントの基板では、中部と下部におけるLSAW速度の分布は平坦である。しかし、上部側では結晶の中心から約 $\pm 20$  mmまでの領域における速度とその外側の領域における速度が若干異なり、弾性的な分布が存在することを示している。他の基板についても、結晶中心から約 $\pm 20$  mmまでの領域ではLSAW速度の分布は平坦であるが、その外側ではLSAW速度が変化している。

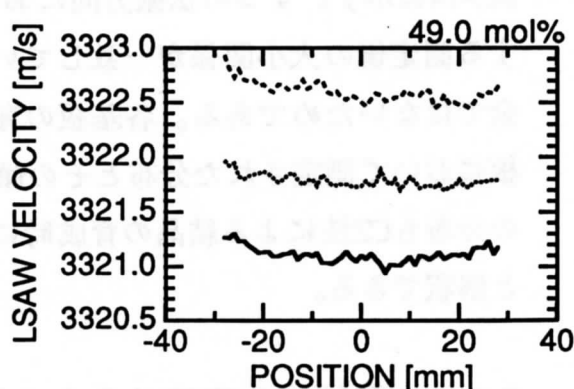
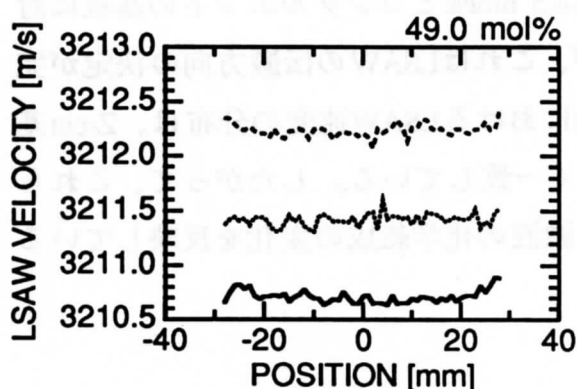
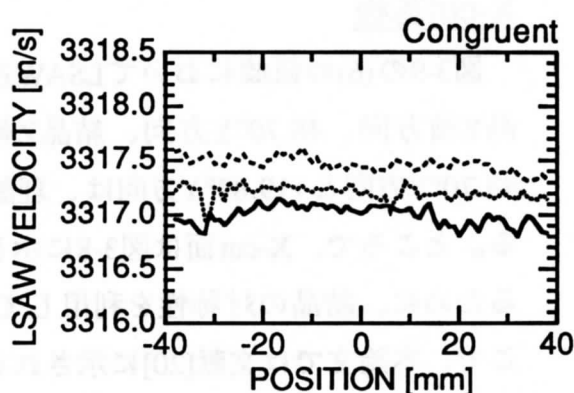
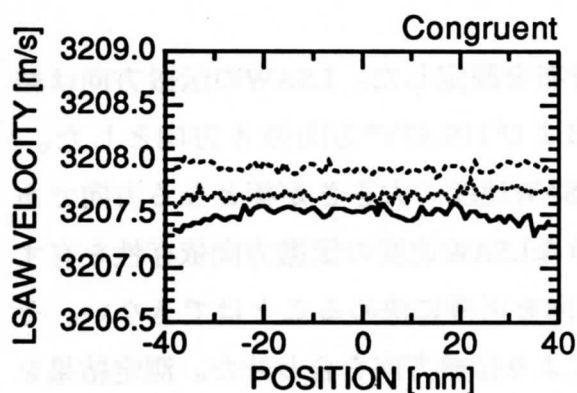
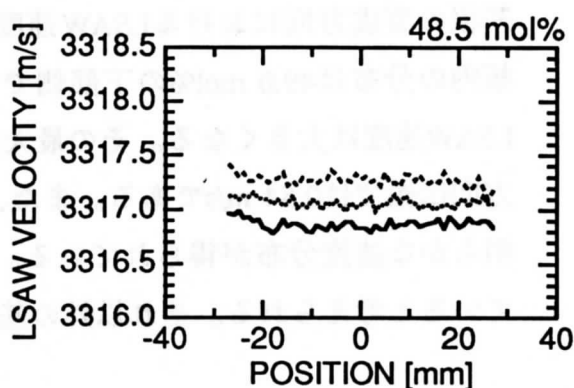
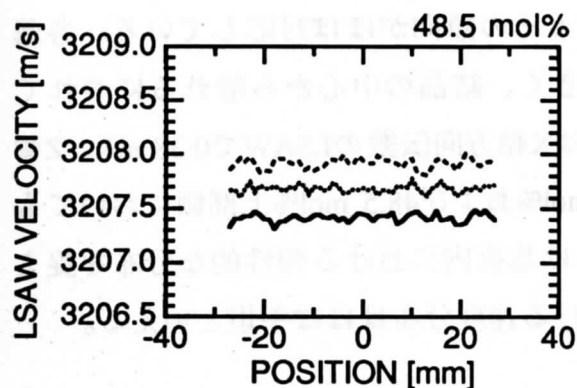
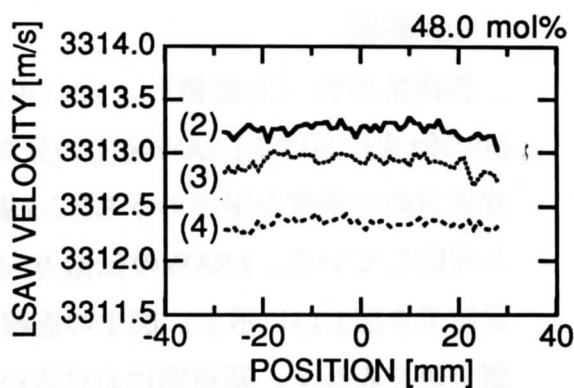
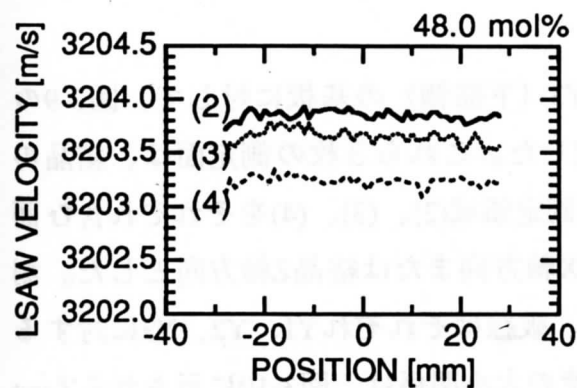


(a) X軸方向伝搬



(b) Y軸方向伝搬

図3-11 コングルエント組成のZ-cut LiTaO<sub>3</sub>の結晶育成方向におけるLSAW速度の分布の測定結果



(a) X軸方向伝搬

(a) Y軸方向伝搬

図3-12 化学組成比の異なる4種類のZ-cut  $\text{LiTaO}_3$ の結晶の直径方向におけるLSAW速度の分布の測定結果

## Y-cut基板

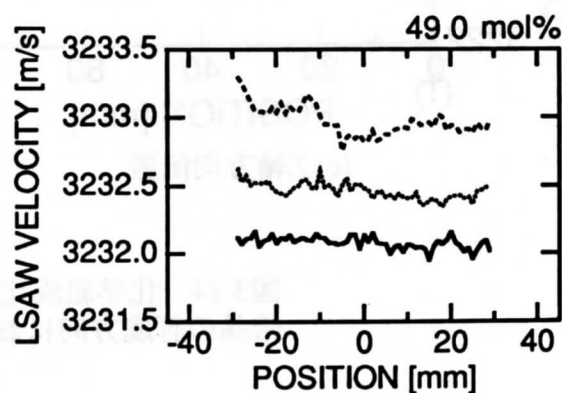
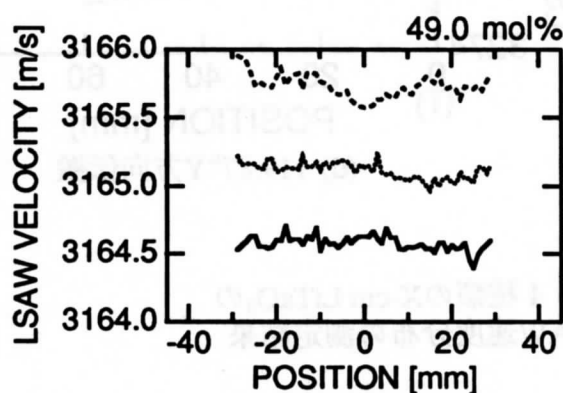
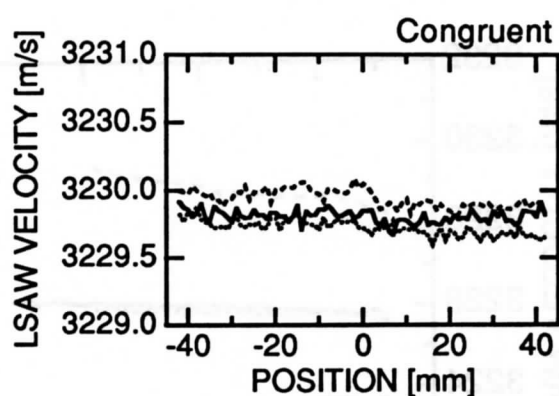
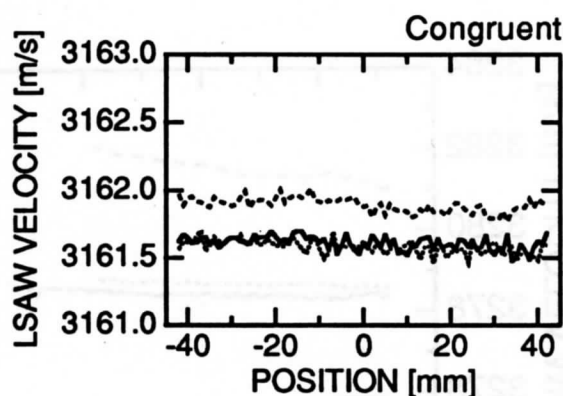
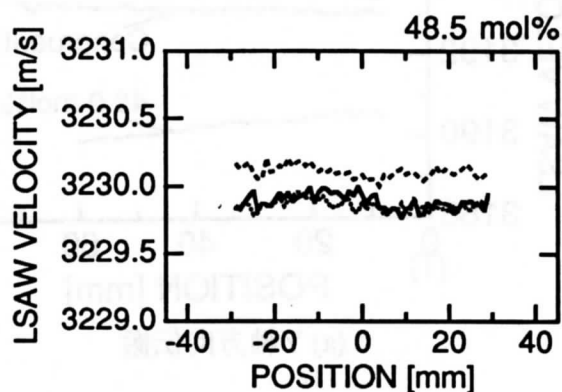
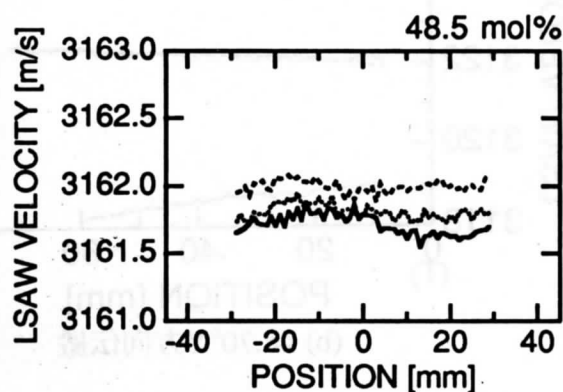
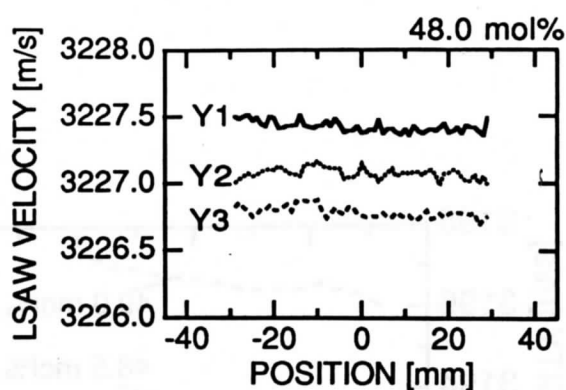
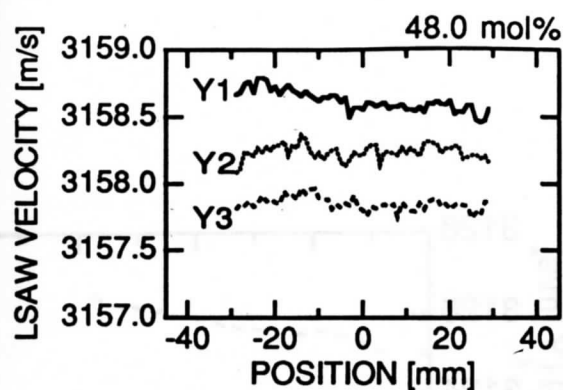
各結晶のY1（上部側）、Y2（中部）、Y3（下部側）の基板に対して、図3-9の(5)の領域におけるLSAW速度の分布を測定した。これら3枚の測定面は、結晶の育成方向に垂直な平面のうちZ-cut基板上の測定領域(2)、(3)、(4)をそれぞれ含む面と対応している。LSAWの伝搬方向は結晶X軸方向または結晶Z軸方向とした。測定結果を図3-13に示す。図中の直線、点線、破線はそれぞれY1、Y2、Y3に対する測定値を表わす。基板間におけるLSAW速度の大小関係は、図3-10に示されるZ-cut基板の育成方向におけるLSAW速度の分布とその傾向がほぼ対応している。各基板内の分布は49.0 mol%の下部側で最も大きく、結晶の中心から離れるにつれてLSAW速度は大きくなる。その最大速度差はX軸方向伝搬のLSAWで0.38 m/s、Z軸方向伝搬では0.54 m/sである。また、48.0 mol%および48.5 mol%上部側においても明らかな速度分布が得られている。これらは基板内における弾性的な分布を捉えていると考えられる。それ以外の基板における速度分布はほぼ平坦といえる。

## X-cut基板

図3-9の(6)の領域においてLSAW速度の分布を測定した。LSAWの伝搬方向は結晶Y軸方向、 $48.70^\circ$ Y方向、結晶Z軸方向および $119.87^\circ$ Y方向の4方向とした。 $48.70^\circ$ Y方向と $119.87^\circ$ Y方向は、理論的にLSAW速度の大きさが極となる方向である。ところで、X-cut面は図3-8に示したようなLSAW速度の伝搬方向依存性を有するために、結晶の対称性を利用して伝搬方向を正確に決めることはできない。そこで、本論文では文献[20]に示される手法により伝搬方向を合わせた。測定結果を図3-14に示す。4つの伝搬方向において、48.5 mol%とコングルエントの基板に対する測定値の大小関係が一致していないが、これはLSAWの伝搬方向の決定が完全ではないためである。各基板の育成方向におけるLSAW速度の分布は、Z-cut基板において測定された分布とその傾向が良く一致している。したがって、これらの分布もCZ法による結晶の育成時における融液の化学組成の変化を反映していると解釈できる。

## 3-3 音響特性と密度の分布の対応

3-2-2-2節では、各結晶の育成方向にLSAW速度の分布があることを示した。またその分布は化学組成比の変化によるものであると予想した。ところで、密度はLSAWの伝搬特性に関与する重要なパラメータであると同時に、2-3-2節で示した

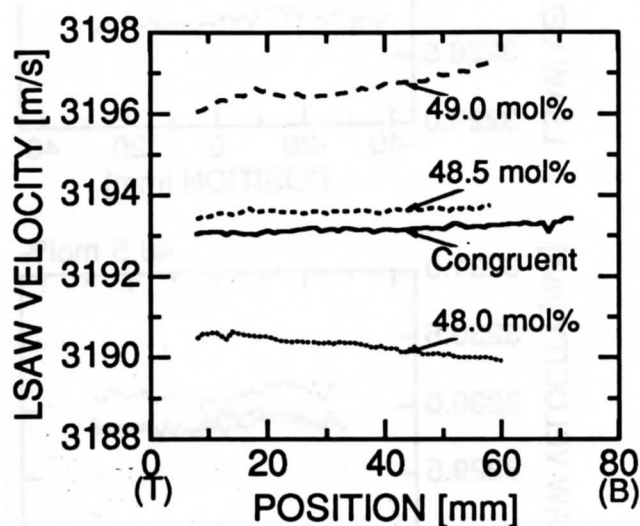


(a) X軸方向伝搬

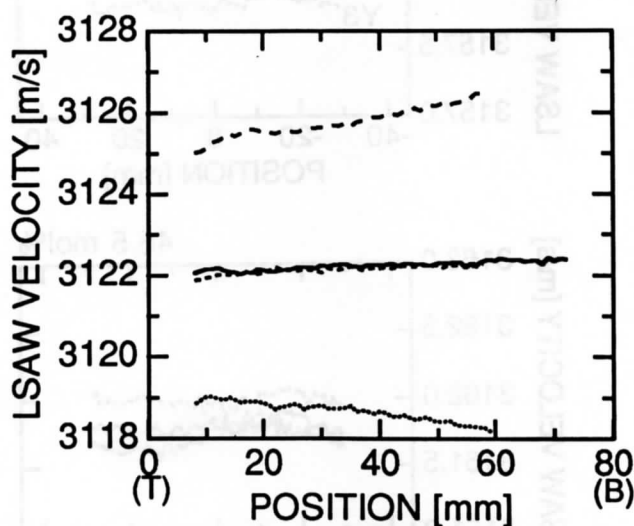
(b) Z軸方向伝搬

図3-13 化学組成比の異なる4種類(12枚)のY-cut  $\text{LiTaO}_3$ の結晶の直径方向におけるLSAW速度の分布の測定結果

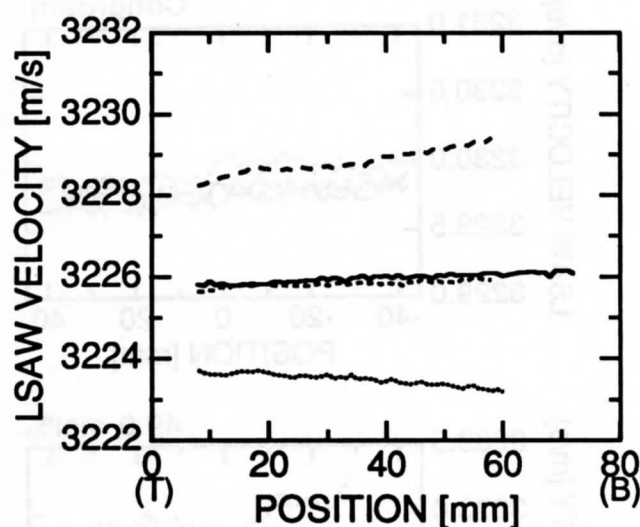




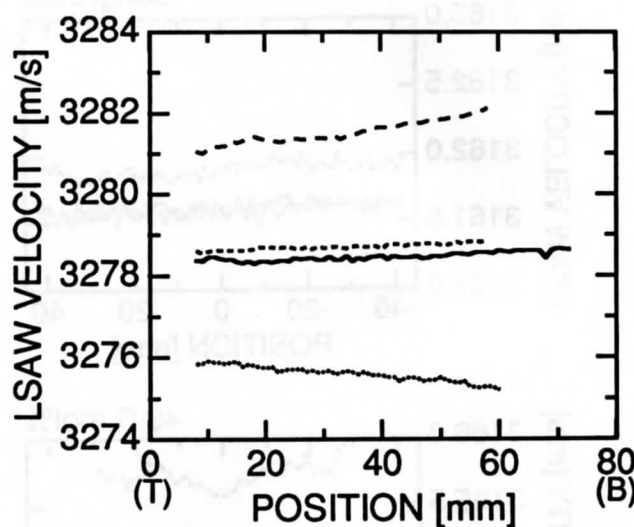
(a) Y軸方向伝搬



(b) 48.70°Y方向伝搬



(c) Z軸方向伝搬



(d) 119.87°Y方向伝搬

図3-14 化学組成比の異なる4種類のX-cut LiTaO<sub>3</sub>の結晶の育成方向におけるLSAW速度分布の測定結果

ように化学組成比と密接な関係がある。そこで、本節では結晶の育成方向における密度の分布を測定してLSAW速度の分布と比較することにより、LSAW速度の分布が化学組成比の分布を反映していることを明らかにする。

## 試料

結晶の育成方向における密度の分布を詳細に得るためには、育成軸に垂直なY-cut基板を試料とすることが望ましい。そこで48.0、48.5、49.0 mol%の結晶に対してはY1、Y2、Y3の3枚を試料とした。コングルエント組成の結晶に対してはさらに詳細な情報を得るために、上記3枚に加えてY1とY2の間およびY2とY3の間から1枚ずつY-cut基板を用意して計5枚を試料とした。

## 測定結果

測定は2-3-2節に示したアルキメデスの原理に基づいて行なった。測定した結果を図3-15に示す。図中の白抜きの印はY-cut基板に対する測定値、黒印は2-3-2節で得たX-cut基板に対する測定値である。X-cut基板の密度は結晶の平均的な密度と考えられるため、各結晶の全長の半分の位置に示した。各結晶の育成方向における密度の分布は、化学組成比の分布を反映している。また、この密度の分布はLSAW速度の分布を示した図3-10または図3-14の上下を反転させた形に良く対応している。したがって、育成方向におけるLSAW速度の分布は化学組成比の分布を捉えているといえる。図3-16に、コングルエント組成の結晶の育成方向におけるLSAW速度の分布と密度の分布を比較して示す。LSAW速度はZ-cut基板においてY軸方向伝搬とした場合の測定値である。LSAW速度の分布と密度の分布の傾向は良く対応している。したがって、このわずかな分布も結晶の育成方向に存在する化学組成の分布を捉えているといえる。

## 3-4 あとがき

本章では2-2節で用意した4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶に対してLSAW速度と密度の分布を測定し、その弾性的な均質性を評価した。

まず、LSAW速度の測定による評価を行なうために、LFB超音波顕微鏡によるLSAW伝搬特性の測定原理およびシステムの構成について述べた。次に、基本的な音響特性として各試料におけるLSAW速度の伝搬方向依存性を測定し、Li<sub>2</sub>O濃度の増加に伴い、LSAW速度が大きくなることを示した。また、結晶の育成方向お

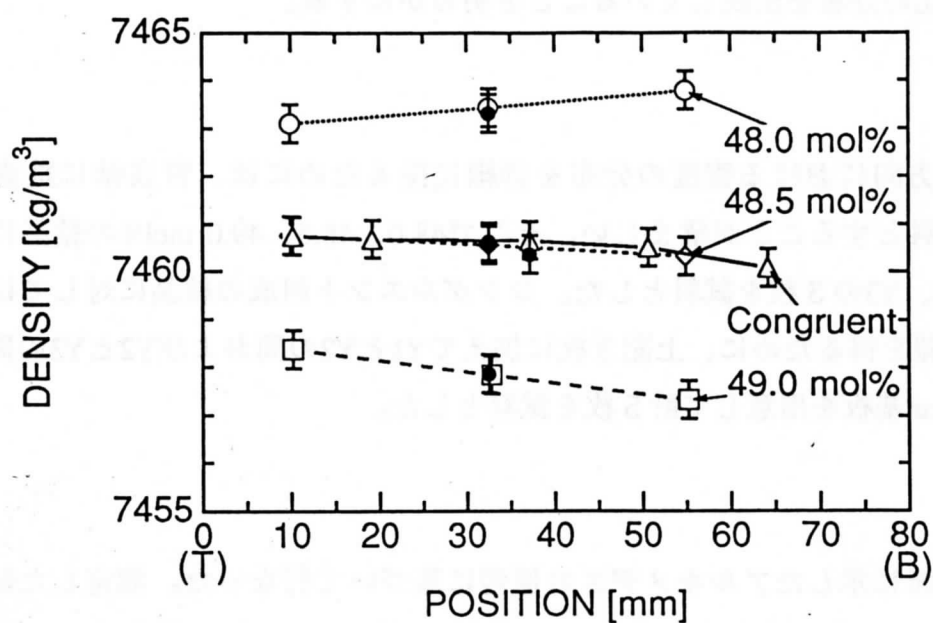


図3-15 化学組成比の異なる4種類のLiTaO<sub>3</sub>単結晶の育成方向における密度の分布  
(白抜き印：Y-cut、黒印：X-cut)

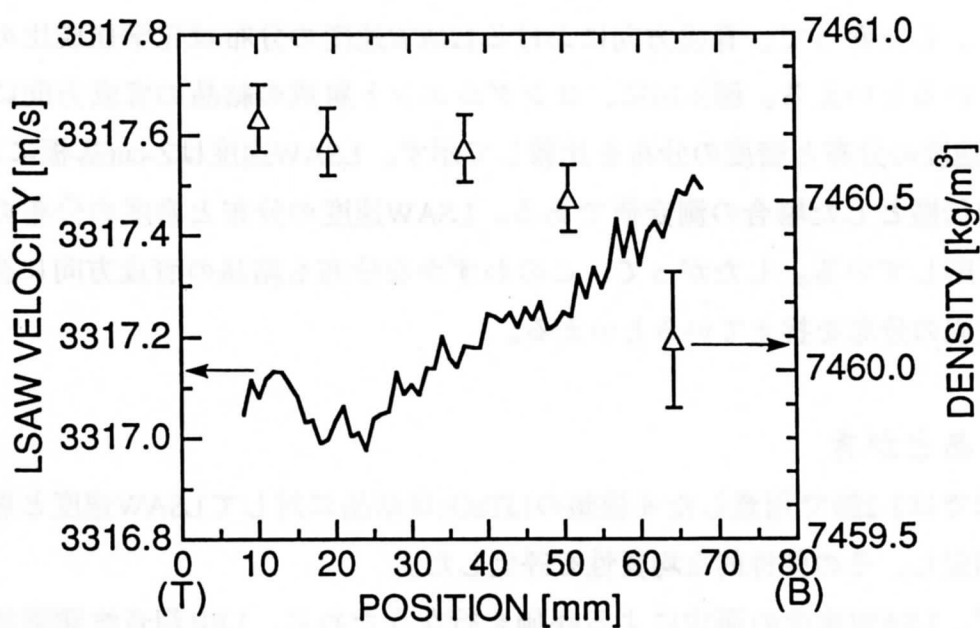


図3-16 コングルエント組成のLiTaO<sub>3</sub>単結晶の育成方向におけるLSAW速度 (Z-cut Y軸方向伝搬) および密度の分布の対比

よび直径方向に存在する弾性的な不均一をLSAW速度の分布として捉えた。これらの分布と2-3-1節での検討結果より、結晶の育成方向における分布は育成時における融液の組成の変化を反映していると解釈した。

次に、化学組成比と密接な関係にある密度の育成方向における分布を測定した。この分布とLSAW速度の分布とが良く対応していることから、得られたLSAW速度分布は結晶中の化学組成分布を反映したものであることを明らかにした。

## 4. 直線集束ビーム超音波顕微鏡による化学組成評価法

### 4-1 まえがき

デバイスの作製において、基板材料の化学的・物理的特性の不均質はデバイス間の性能および信頼性の差となって現われる。特に化学組成比の分布は他の特性のばらつきの主因となるため、その分布をより小さく抑えることが重要となる。これは化学組成比の分布を高精度に測定できる手法により詳細に評価を行ない、その結果を材料の作製条件にフィードバックすることにより実現できる。

このことは本論文でとりあげている光学用の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶についても同様である。しかし第2章で検討したように、従来から化学組成分析に用いられている手法は、DTA法を除いて高精度な評価を行なうことは困難であった。一方、第3章において示したように、LFB超音波顕微鏡は化学組成比の分布をLSAW速度の変化として詳細に検出できた。したがって本装置は新しい材料評価装置として期待できると考える。

そこで、本章ではLFB超音波顕微鏡により化学組成比の評価を定量的に行なう手法を確立する。まず4-2節では、化学組成比の変化によりLSAW速度が変化することを音響的に解釈するために、基本的な物理量であるバルク音響特性の化学組成依存性について検討する。そしてLSAW速度とバルク音響特性の関係について基礎的な検討を行なう。4-3節では、LSAW速度の化学組成比依存性について検討し、化学組成評価に適したLSAWの伝搬方向を決める。つぎにLSAW速度と化学組成比の関係（検量線）を作製して本手法を確立する。4-4節では、本手法を市販の光学用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の評価に適用してその有用性を示す。

### 4-2 漏洩弾性表面波速度を変化させる要因に関する検討

第3章において実験的に示したように、LSAW速度は化学組成比を反映している。一方で、LSAW速度は弾性関連物理定数を反映した値である。また、化学組成比の変化による結晶構造の変化は弾性関連物理定数の変化に反映される。したがって、化学組成比の変化によりLSAW速度が変化することを音響的に解釈するためには、定数の化学組成比依存性を把握して、LSAW速度との関係を検討する必要があると考える。そこで本節では、化学組成比の異なる4種類の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶のバルク音響特性を測定して実効的な弾性定数の化学組成比依存性を検討する。また、LSAW速度の変化はこの依存性を反映していることを理論的に検討する。

#### 4-2-1 バルク音響特性の化学組成比依存性

2-2節において準備した化学組成比の異なる4種類の結晶の密度 $\rho$ と縦波音速 $V$ を測定して、実効的な弾性定数 $c=\rho V^2$ を求める。密度はアルキメデスの原理に基づいて求める。音速はRFバーストパルスを用いたバルク超音波パルス干渉法[21]により求める。

図4-1に音速測定における実験構成を示す。トランスジューサにおいて超音波に変換された信号はロッド、カプラおよび試料中を伝搬する。そしてこれらの境界面において透過あるいは反射し、試料の裏面で全反射する。試料の表面からの反射信号 $V_2$ と裏面からの反射信号 $V_3$ を図4-2に示すようにダブルパルス法により時間軸上で重ね合わせる。ここで、ゲートにより $V_2+V_3$ の信号を抽出して周波数を掃引すると図4-3に示すような干渉波形が得られる。この干渉周期 $\Delta f$ と音速 $V$ の間には式(4-1)の関係が成り立つ。

$$V = 2 \cdot \Delta f \cdot h \quad (4-1)$$

ここで $h$ は試料の厚さを示す。したがって、 $\Delta f$ と $h$ を求めることにより、試料のバルク波音速を求めることができる。 $\Delta f$ は干渉波形をFFT解析することにより求める。 $h$ は光学式のリニアエンコーダを内蔵した接触式の測長器により $\pm 0.1 \mu\text{m}$ の精度で測定する。

まず、各結晶のX-cut、Y-cut (Y2)、Z-cut基板に対し、それぞれX軸、Y軸およびZ軸伝搬の縦波音速 $V_{il}$ を測定した。 $i$ は伝搬方向のX、Y、Zを表わす。各基板における測定位置を図4-4に示す。カプラには水を用いた。超音波周波数は90~220 MHzとした。Y軸伝搬の縦波音速の測定では伝搬方向と結晶軸のずれの影響を補正した。測定結果を図4-5に示す。横軸の $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度は2-3-1節において求めた値である。図中の直線は最小二乗法により求めた近似直線である。 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度が大きくなると縦波音速は単調に大きくなる。その割合は、X軸伝搬とZ軸伝搬においてそれぞれ33.9 (m/s)/mol%、33.7 (m/s)/mol%と近い値となった。一方、Y軸伝搬は45.2 (m/s)/mol%と大きく、他の伝搬方向に比べて化学組成比の変化に敏感である。

つぎに密度であるが、X-cutおよびY-cut (Y2) 基板の密度は既に2-3-2節および3-3節において測定したのでその値を用いる。Z-cut基板の密度はX-cut基板における測定値を用いる。

これらの縦波音速 $V_{il}$ と密度 $\rho$ の測定値から実効的な弾性定数 $c_{il}$ を求める。ここ

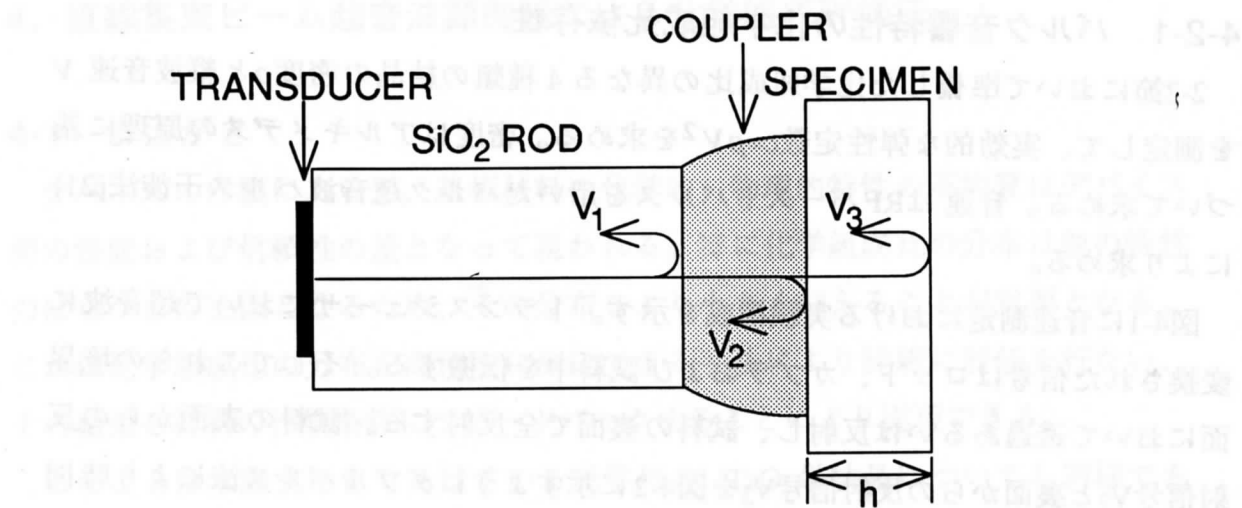


図4-1 バルク超音波パルス干渉法による音速測定における実験構成

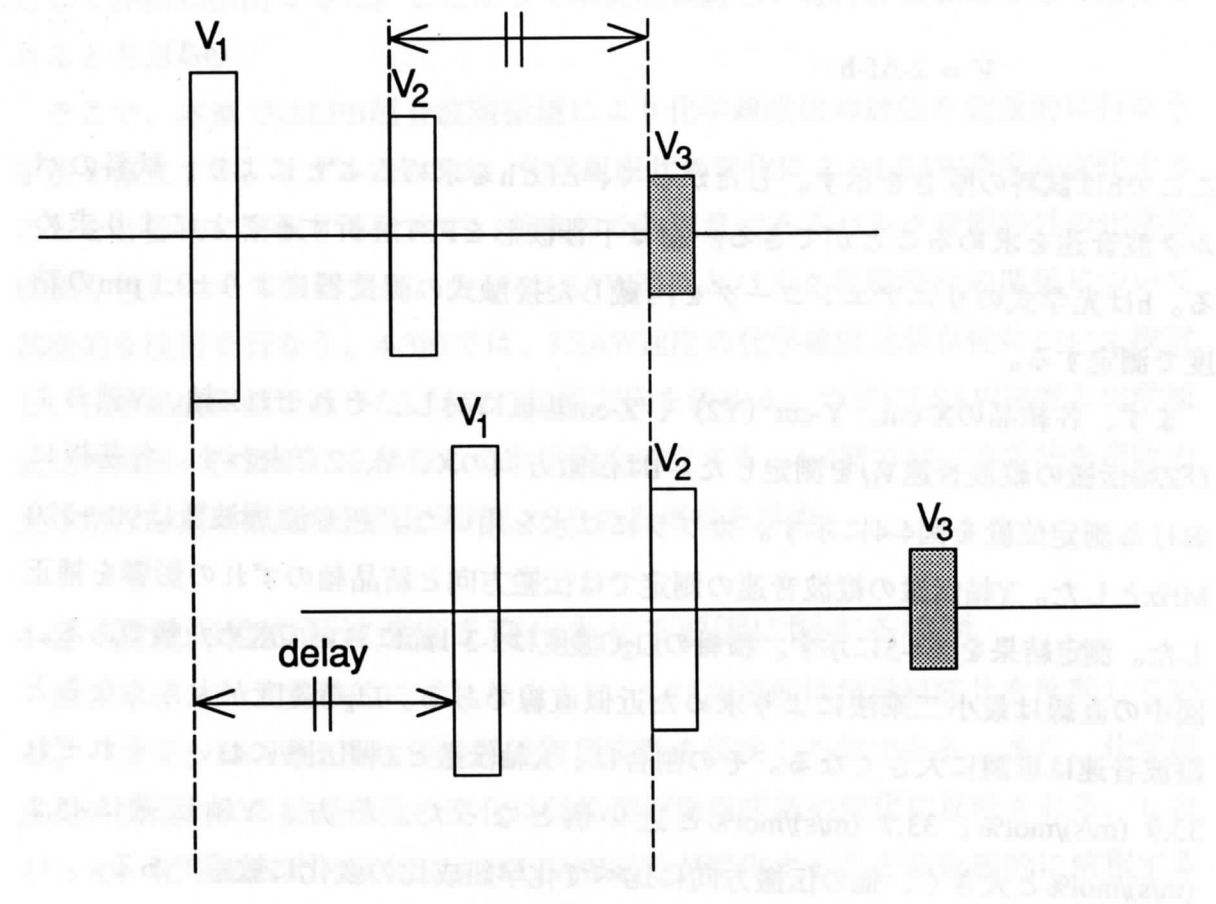


図4-2 ダブルパルス法の模式図

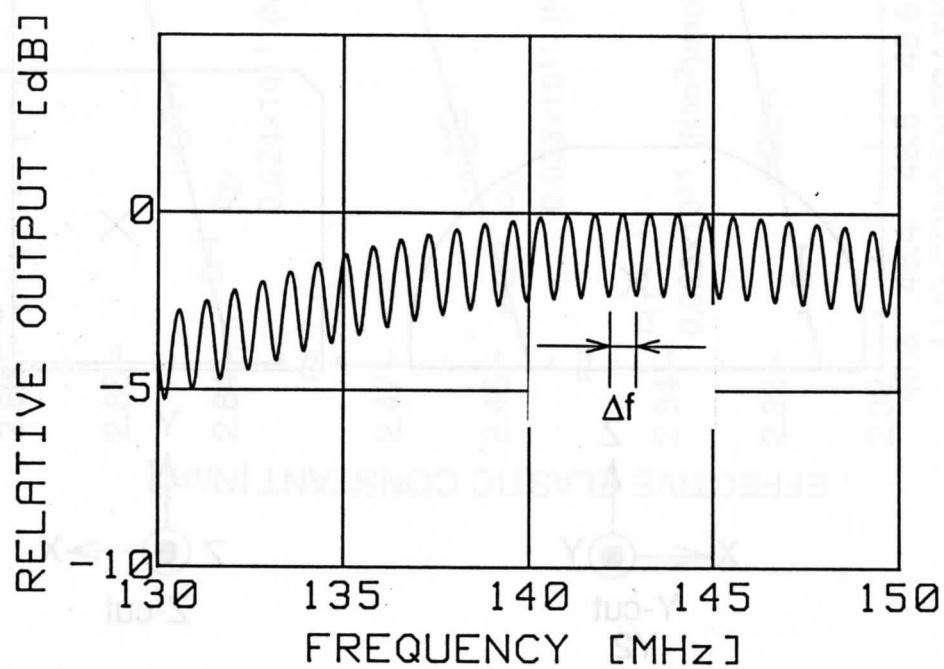


図4-3 干渉波形の例



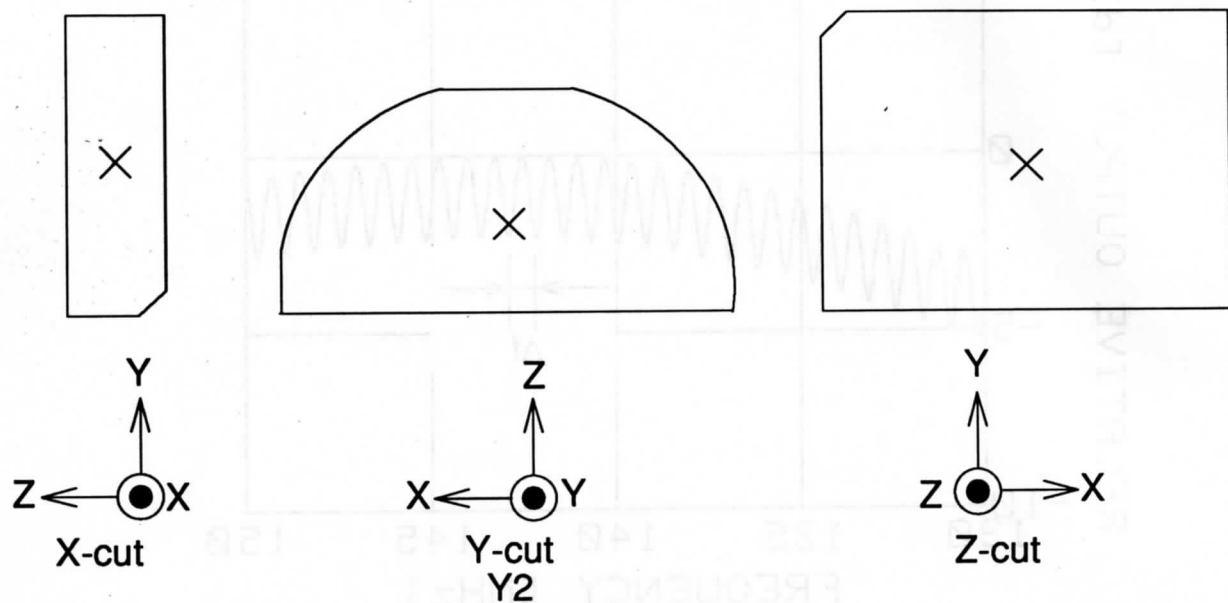


図4-4 縦波音速を測定した基板と測定位置

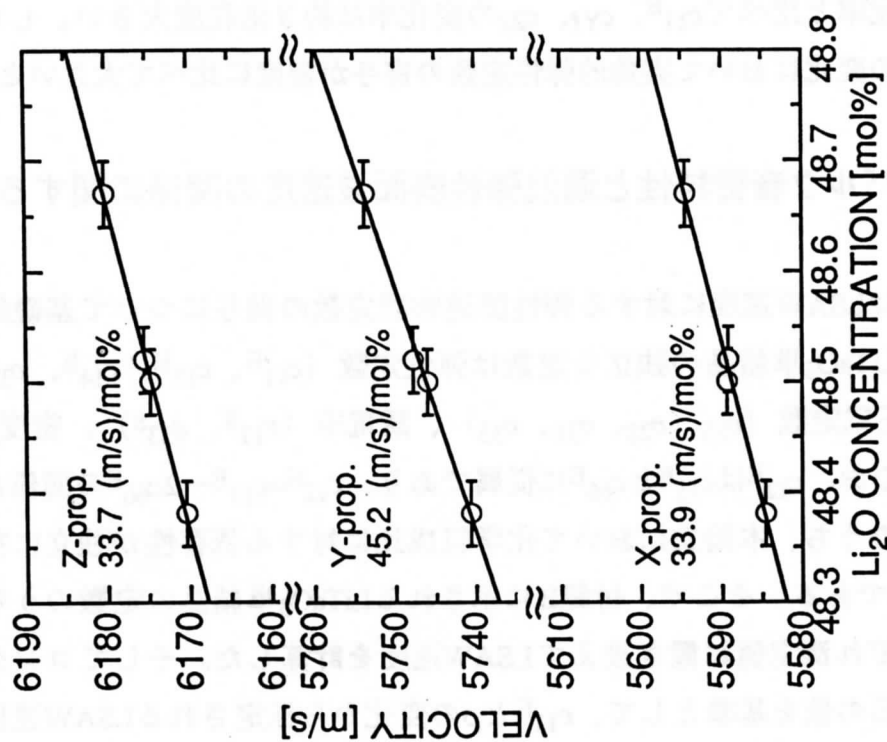


図4-5  $\text{LiTaO}_3$ 単結晶におけるバルク波速度の  
 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度依存性の測定結果

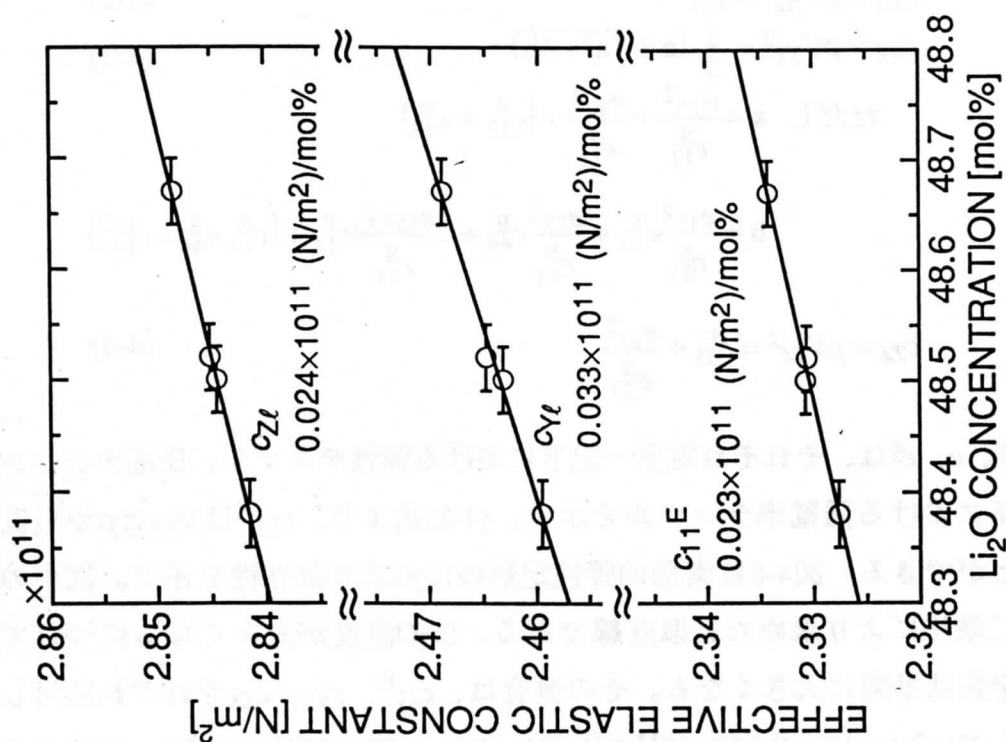


図4-6  $\text{LiTaO}_3$ 単結晶における実効的弾性定数の  
 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度依存性

で、 $c_{\ell}$ と弾性関連物理学定数は以下の式(4-2)～(4-4)により関係付けられる。

$$c_{X\ell} = \rho V_{X\ell}^2 = c_{11}^E \quad (4-2)$$

$$c_{Y\ell} = \rho V_{Y\ell}^2 = \frac{1}{2} (a + \sqrt{a^2 - 4b}) \quad (4-3)$$

$$\text{ただし } a = \frac{e_{15}^2}{\epsilon_{11}^S} + \frac{e_{22}^2}{\epsilon_{11}^S} + (c_{11}^E + c_{44}^E)$$

$$b = \frac{e_{15}^2}{\epsilon_{11}^S} c_{11}^E + \frac{e_{22}^2}{\epsilon_{11}^S} c_{44}^E + 2 \frac{e_{15} e_{22}}{\epsilon_{11}^S} c_{14}^E + (c_{11}^E c_{44}^E - c_{14}^E{}^2)$$

$$c_{Z\ell} = \rho V_{Z\ell}^2 = c_{33}^E + \frac{e_{33}^2}{\epsilon_{33}^S} \quad (4-4)$$

ここで、 $c^E$ 、 $e$ 、 $\epsilon^S$ は、それぞれ電界一定下における弾性テンソル、圧電テンソル、歪み一定下における誘電率テンソルを示す。(4-2)式より、 $c_{11}^E$ は $V_{X\ell}$ と $\rho$ から直接求めることができる。図4-6に実効的弾性定数の $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度依存性を示す。図中の直線は最小二乗法により求めた近似直線である。 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度が大きくなるにつれて実効的弾性定数は単調に大きくなる。その割合は、 $c_{11}^E$ 、 $c_{Y\ell}$ 、 $c_{Z\ell}$ それぞれに対して $0.023 \times 10^{11} (\text{N/m}^2)/\text{mol}\%$ 、 $0.033 \times 10^{11} (\text{N/m}^2)/\text{mol}\%$ 、 $0.024 \times 10^{11} (\text{N/m}^2)/\text{mol}\%$ である。

ここで、 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度が変化した時の実効的弾性定数と密度の変化率をコングルエント組成の結晶に対して得られた値を基準として求めた。その結果を図4-7に示す。密度の変化率と比べて $c_{11}^E$ 、 $c_{Y\ell}$ 、 $c_{Z\ell}$ の変化率は約3倍程度大きい。したがって、縦波音速の変化において実効的弾性定数の寄与が密度に比べて大きいと言える。

#### 4-2-2 バルク音響特性と漏洩弾性表面波速度の関係に関する基礎的検討

ここではLSAW速度に対する弾性関連物理定数の関与について基礎的な検討を行なう。 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の独立な定数は弾性定数 ( $c_{11}^E$ 、 $c_{13}^E$ 、 $c_{14}^E$ 、 $c_{33}^E$ 、 $c_{44}^E$ 、 $c_{66}^E$ )、圧電定数 ( $e_{15}$ 、 $e_{22}$ 、 $e_{31}$ 、 $e_{33}$ )、誘電率 ( $\epsilon_{11}^S$ 、 $\epsilon_{33}^S$ )、密度 $\rho$ の計13個である。なお、 $c_{12}^E$ は $c_{11}^E$ と $c_{66}^E$ に従属であり、 $c_{12}^E = c_{11}^E - 2c_{66}^E$ の関係がある。これら13個のうち、本論文において化学組成比に対する依存性が独立に得られたのは $c_{11}^E$ と $\rho$ である。そこで、付録Bに示される $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の定数のうちこれら2つをそれぞれ測定値に置き換えてLSAW速度を計算した。そしてコングルエント組成の結晶の値を基準として、 $c_{11}^E$ と $\rho$ の変化から推定されるLSAW速度の変化量をもとめた。この結果を図4-8に示す。図中の $\Delta$ は $c_{11}^E$ と $\rho$ の両方を、 $\bigcirc$ は $c_{11}^E$ のみ

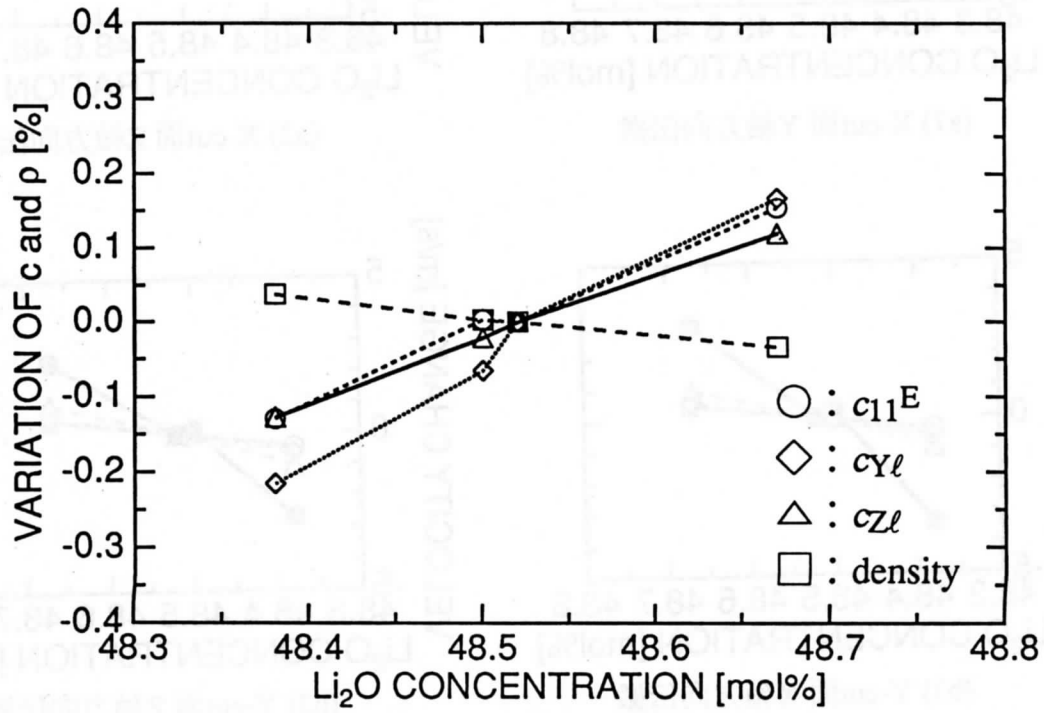
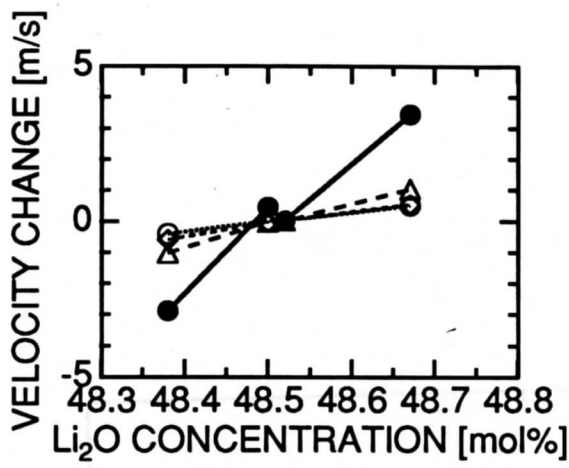
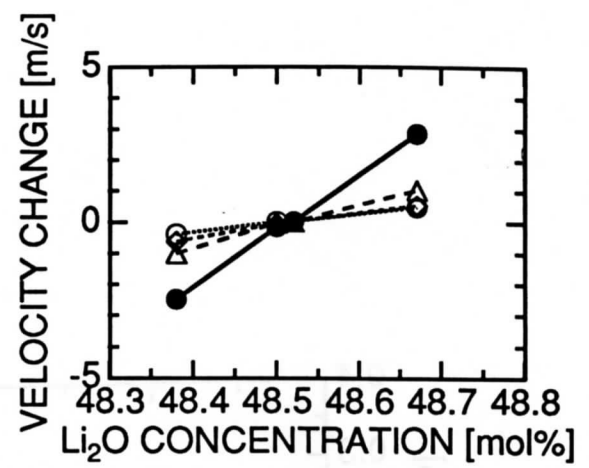


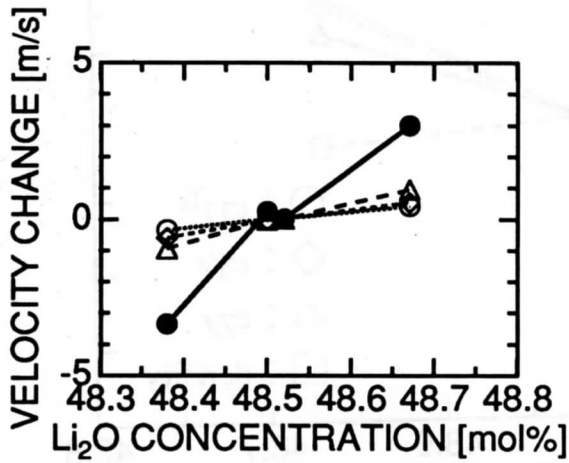
図4-7  $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度の変化に対する実効的弾性定数と密度の変化率



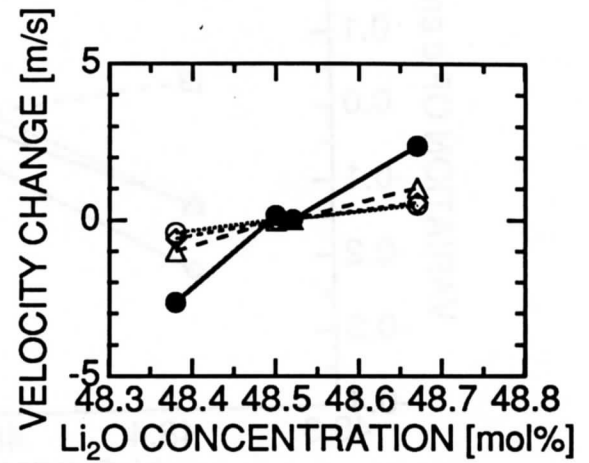
(a1) X-cut面 Y軸方向伝搬



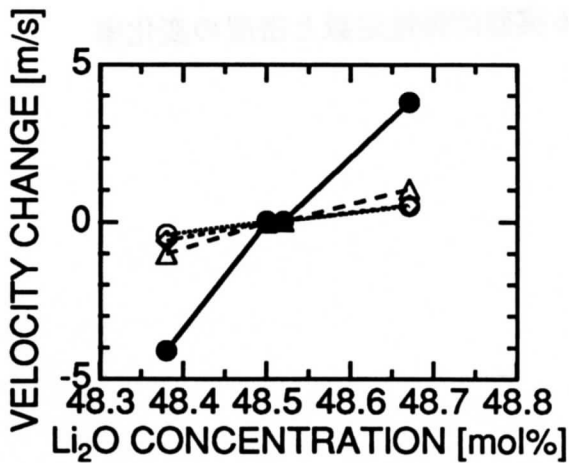
(a2) X-cut面 Z軸方向伝搬



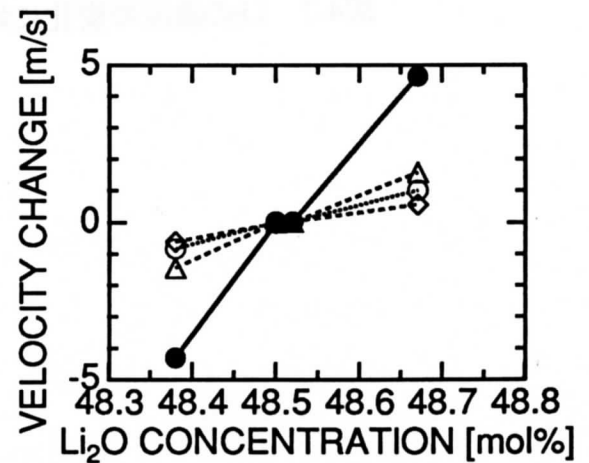
(b1) Y-cut面 X軸方向伝搬



(b2) Y-cut面 Z軸方向伝搬



(c1) Z-cut面 X軸方向伝搬



(c2) Z-cut面 Y軸方向伝搬

図4-8 測定された $c_{11}E$ と密度の変化から推定されるLSAW速度の変化量とその測定値との比較

(黒丸：測定値、白抜きの印：計算値 (△： $c_{11}E$ と密度、○： $c_{11}E$ 、◇：密度))

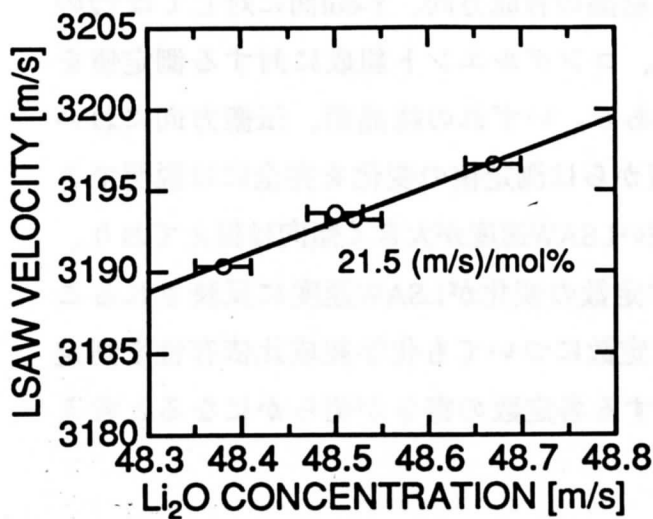
を、◇は $\rho$ のみを測定値に置き換えた場合の計算値を示す。●は測定値を示す。この測定値は、X-cut面とZ-cut面に対しては結晶の育成方向、Y-cut面に対してはY2の直径方向におけるLSAW速度を平均して、コングルエント組成に対する測定値を基準として求めたLSAW速度の変化量である。いずれの結晶面、伝搬方向においても $c_{11}^E$ と $\rho$ の寄与は小さく、理論的な値からは測定値の変化を完全には説明できない。しかし、 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度が大きくなるに従いLSAW速度が大きく傾向は捉えており、化学組成比の変化による弾性関連物理学定数の変化がLSAW速度に反映されることがわかる。今後、残りの弾性関連物理学定数についても化学組成比依存性を測定することにより、LSAW速度の変化に対する各定数の寄与が明らかになると考える。

#### 4-3 漏洩弾性表面波速度と化学組成比の関係

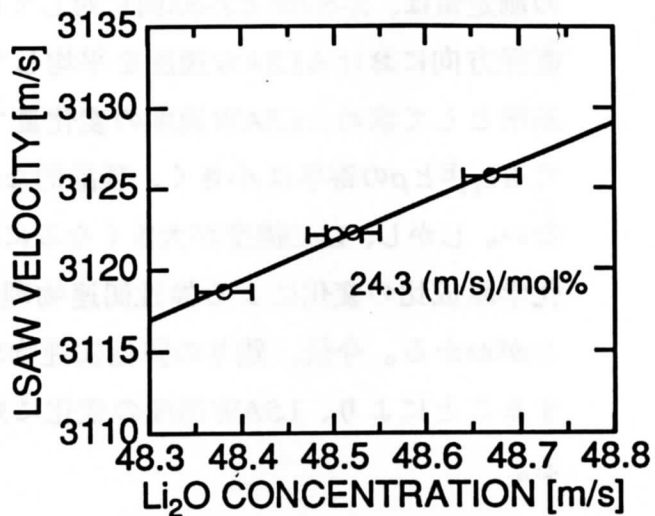
LFB超音波顕微鏡により材料の化学組成比を定量的に評価するためには、化学組成比とLSAW速度の関係を表わす検量線を把握している必要がある。また、その評価をより高分解能に行なうためには、化学組成比の変化に敏感な伝搬方向のLSAWを用いるべきである。本節ではこの2点について検討し、LFB超音波顕微鏡による化学組成評価法を確立する。

##### LSAW速度の化学組成比依存性

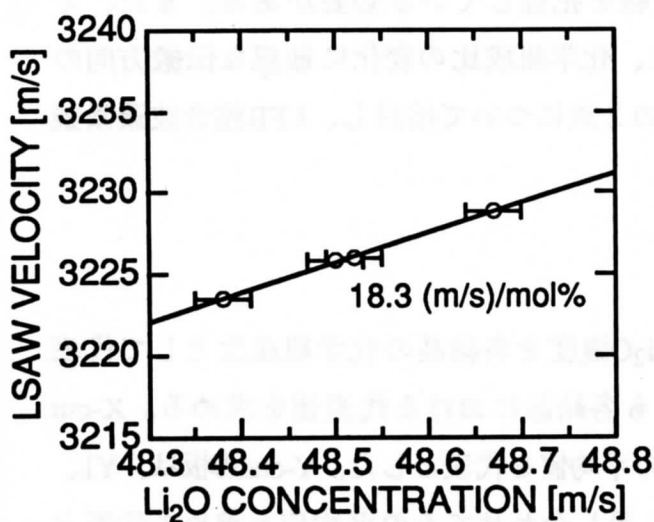
本論文では、2-3-1節において求めた $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度を各結晶の化学組成比として代表させている。そこでLSAW速度についても各結晶における代表値を求める。X-cut基板とZ-cut基板は育成方向における分布の平均値を代表とした。Y-cut基板は、Y1、Y2、Y3の直径方向における分布をすべて足し合わせてその平均値を求めて代表とした。そしてこれらの値を用いてLSAW速度の化学組成比依存性を求めた。その結果を図4-9に示す。図中の直線および数値は、それぞれ最小二乗法により求めた近似直線およびその傾きである。この傾きはLSAW速度の化学組成変化に対する感度を示す。Z-cut基板におけるY方向伝搬のLSAWはその値が $30.7 \text{ (m/s)/mol\%}$ と最も大きい。したがって、この伝搬方向のLSAWは化学組成比の評価に最も適していると考えられる。



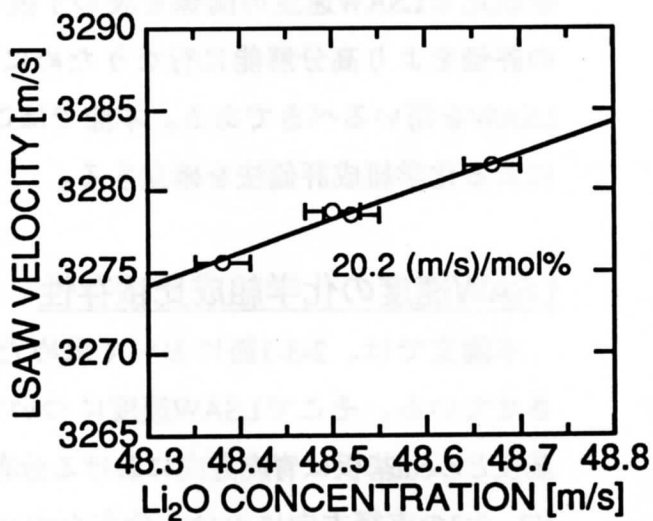
(a) X-cut面 Y軸方向伝搬



(b) X-cut面 48.70°Y方向伝搬

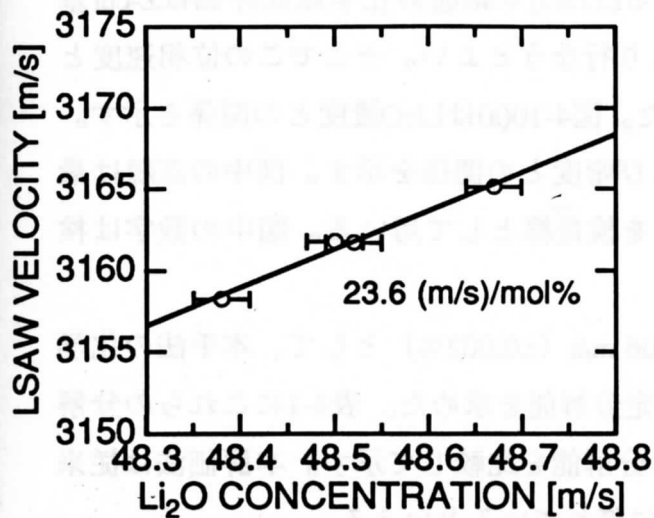


(c) X-cut面 Z軸方向伝搬

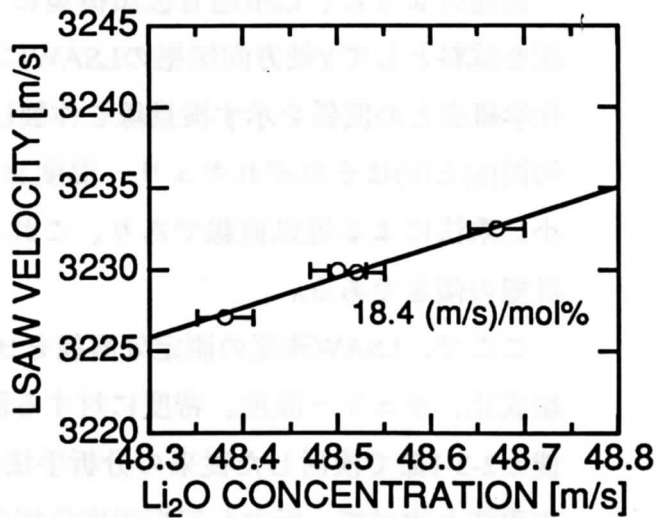


(d) X-cut面 119.87°Y方向伝搬

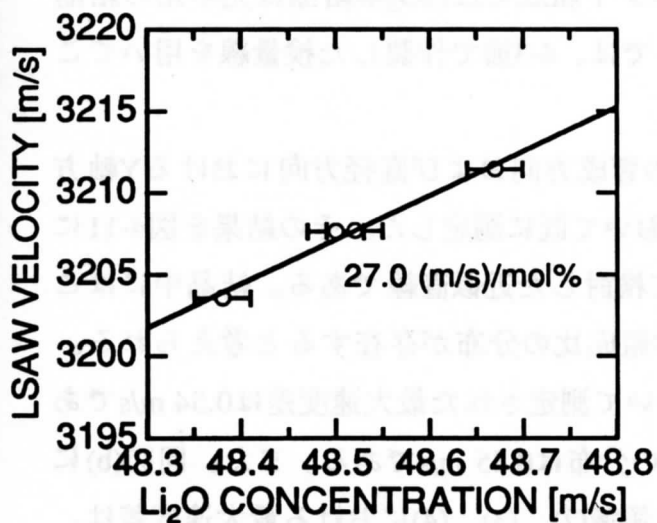
図4-9 LiTaO<sub>3</sub>単結晶におけるLSAW速度の化学組成比依存性 (その1)



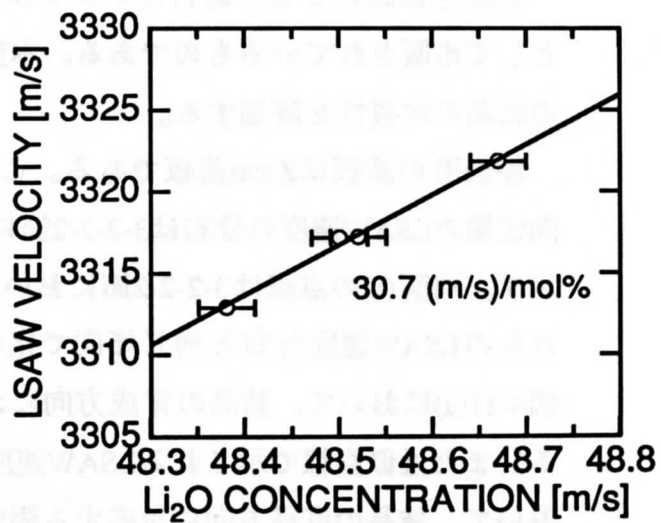
(e) Y-cut面 X軸方向伝搬



(f) Y-cut面 Z軸方向伝搬



(g) Z-cut面 X軸方向伝搬



(h) Z-cut面 Y軸方向伝搬

図4-9 LiTaO<sub>3</sub>単結晶におけるLSAW速度の化学組成比依存性 (その2)



## LSAW速度と化学組成比の関係

前述のように、LFB超音波顕微鏡による $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の化学組成評価はZ-cut基板を試料としてY軸方向伝搬のLSAWにより行なうとよい。そこでこの位相速度と化学組成との関係を示す検量線を作製した。図4-10(a)は $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度との関係を示す。同図(b)と(c)はそれぞれキュリー温度および密度との関係を示す。図中の直線は最小二乗法による近似直線であり、これらを検量線として用いる。図中の数字は検量線の傾きである。

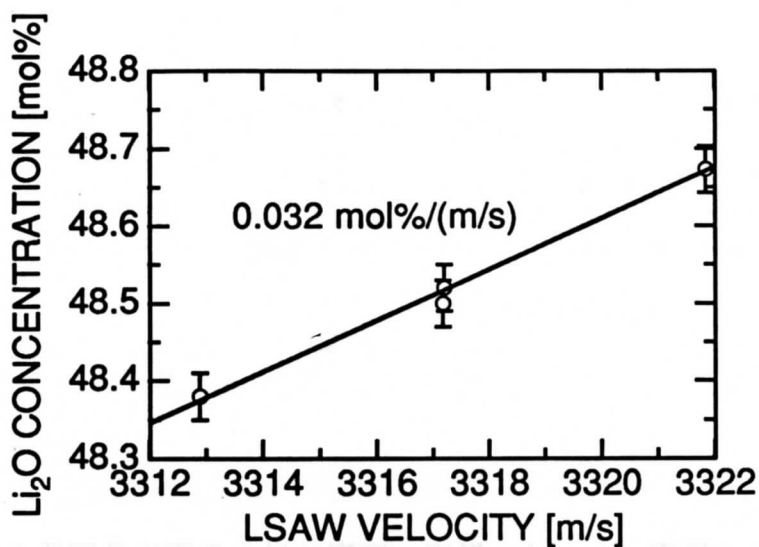
ここで、LSAW速度の測定分解能を $\pm 0.06 \text{ m/s}$  ( $\pm 0.002\%$ ) として、本手法の化学組成比、キュリー温度、密度に対する測定分解能を求めた。表4-1にこれらの分解能と2-3-1節で検討した従来の分析手法の分解能を比較して示す。本評価法は従来の手法と比べて一桁から二桁程度分解能に優れているといえる。

### 4-4 市販の単結晶に対する評価

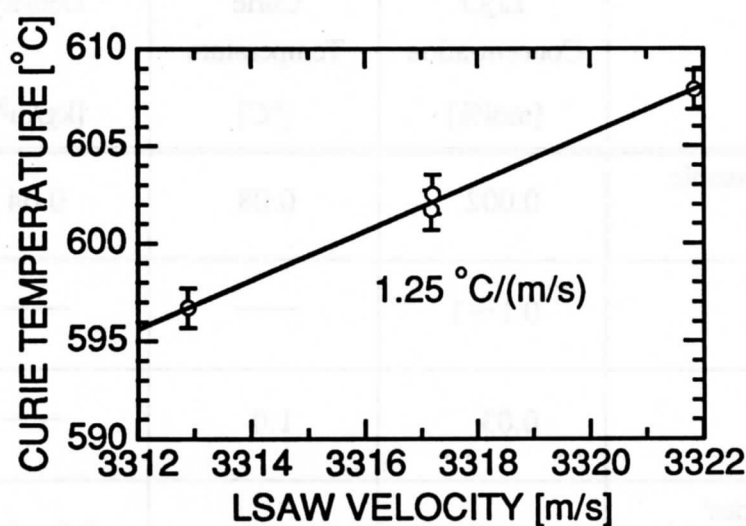
本研究においてとりあげたコングルエント組成の $\text{LiTaO}_3$ 単結晶は光学用の結晶として市販されているものである。本節では、4-3節で作製した検量線を用いてこの結晶の均質性を評価する。

評価用の基板はZ-cut基板である。この育成方向および直径方向におけるY軸方向伝搬のLSAW速度の分布は3-2-2-2節において既に測定した。その結果を図4-11に示す。同図(a)の点線は3-2-2-2節において検討した近似直線である。結晶中にはこれらのLSAW速度分布と同じ傾向で化学組成比の分布が存在すると考えられる。図4-11(a)において、結晶の育成方向において測定された最大速度差は $0.54 \text{ m/s}$ である。また近似直線で示されるLSAW速度の分布は $0.45 \text{ m/s}$ である。また、同図(b)において、結晶の直径方向に対応する測定領域(2)、(3)、(4)における最大速度差は、それぞれ $0.35 \text{ m/s}$ 、 $0.38 \text{ m/s}$ 、 $0.31 \text{ m/s}$ である。また、基板全体における最大速度差は $0.82 \text{ m/s}$ である。これらのLSAW速度分布を検量線により化学組成比、キュリー温度、密度の分布として見積った。その結果を表4-2に示す。結晶の中心付近において、育成方向の化学組成比の分布は $0.017 \text{ mol\%}$ 以下 ( $0.015 \text{ mol\%}$ 程度) である。また、それぞれの直径方向における分布は $0.012 \text{ mol\%}$ 以下である。結晶全体における化学組成比の分布は $0.026 \text{ mol\%}$ 以下と小さい。

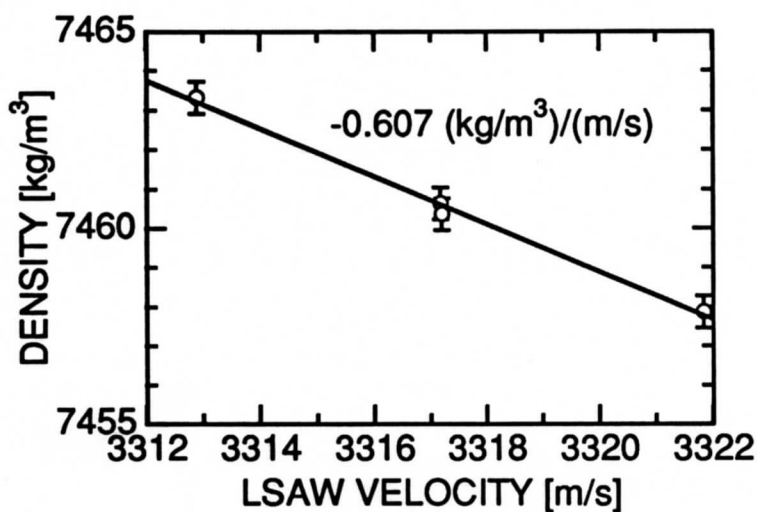
このように、LFB超音波顕微鏡による評価法は結晶中に存在するわずかな化学組成比分布を詳細にすることが可能であり、新しい材料評価法として期待できる。



(a)  $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度との関係



(b) キュリー温度との関係

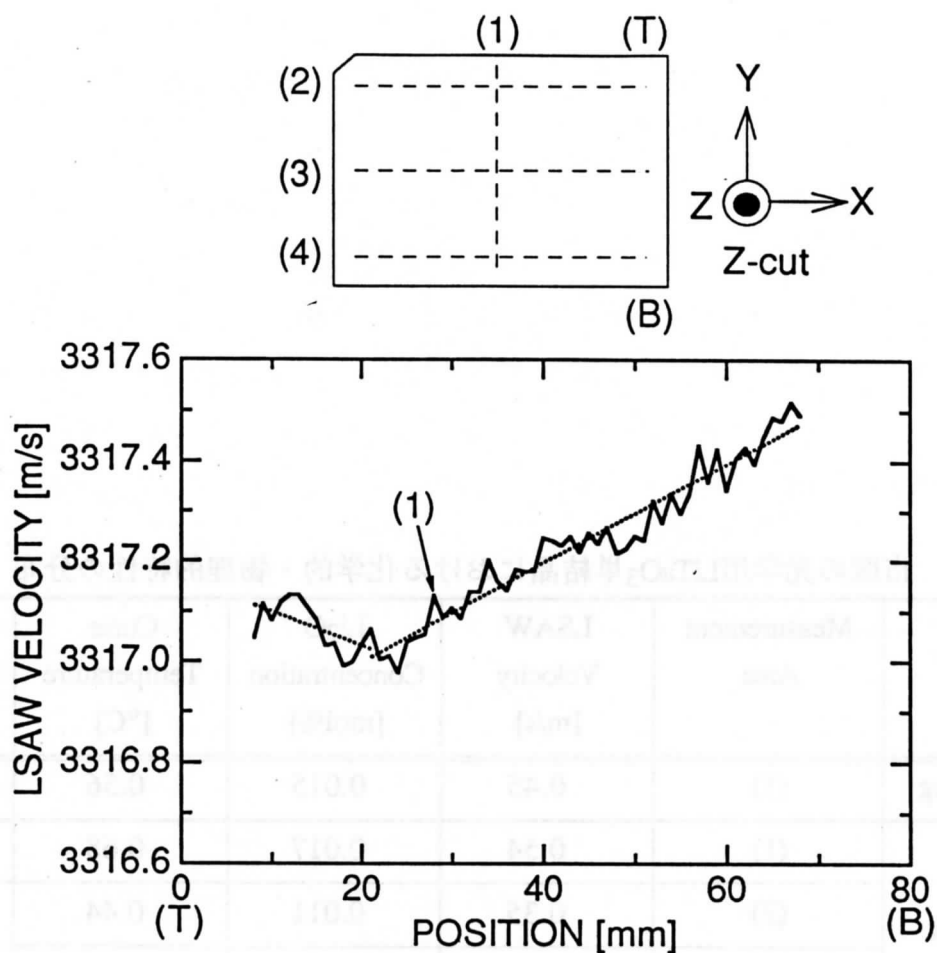


(c) 密度との関係

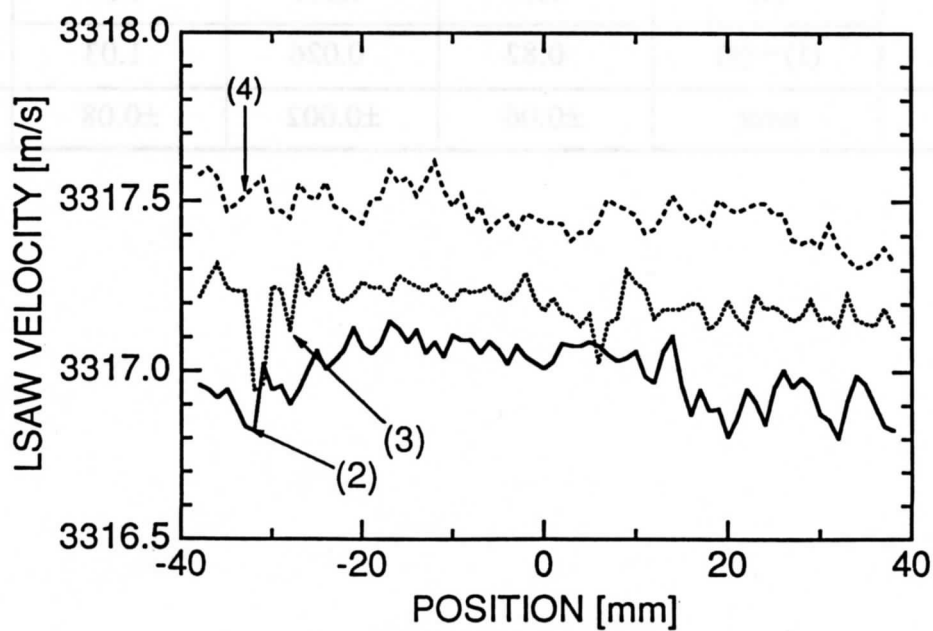
図4-10 ZY- $\text{LiTaO}_3$ 単結晶におけるLSAW速度と $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度、キュリー温度、密度の関係

表4-1  $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度、キュリー温度、密度に対する測定分解能の比較

	$\text{Li}_2\text{O}$ Concentration [mol%]	Curie Temperature [°C]	Density [kg/m <sup>3</sup> ]
This Ultrasonic Method	0.002	0.08	0.04
ICP	0.1~1	—	—
DTA	0.03	1.0	—
Archimedes' Method	—	—	0.2~0.4



(a) 結晶の育成方向



(b) 結晶の直径方向

図4-11 コングルエント組成のZY-LiTaO<sub>3</sub>の結晶育成方向および直径方向におけるLSAW速度の分布

表4-2 市販の光学用LiTaO<sub>3</sub>単結晶における化学的・物理的特性の分布

	Measurement Area	LSAW Velocity [m/s]	Li <sub>2</sub> O Concentration [mol%]	Curie Temperature [°C]	Density [kg/m <sup>3</sup> ]
Fitting	(1)	0.45	0.015	0.56	0.27
Peak to Peak	(1)	0.54	0.017	0.68	0.33
	(2)	0.35	0.011	0.44	0.21
	(3)	0.38	0.012	0.48	0.23
	(4)	0.31	0.010	0.39	0.19
	(1)~(4)	0.82	0.026	1.03	0.50
	error	±0.06	±0.002	±0.08	±0.04

## 4-5 あとがき

本章ではLFB超音波顕微鏡による光学用LiTaO<sub>3</sub>単結晶の化学組成評価法を確立した。

まず、LSAW速度の変化を音響的に解釈するために、化学組成の異なる4種類の単結晶に対してバルク音響特性を測定し、実効的弾性定数の化学組成比依存性を検討した。さらにこの定数とLSAW速度の関係について基礎的な検討を行ない、LSAW速度の分布が化学組成の分布を反映していることを確認した。

次に本評価法を確立するために、LSAW速度と化学組成比の関係について検討した。まず、LSAW速度の化学組成比依存性を検討し、その変化に最も敏感である基板および伝搬方向を決定した。そしてこの方向に伝搬するLSAWに対して化学組成比、キュリー温度、密度との関係を表わす検量線を作製した。また本評価法が従来の分析手法よりも優れた分解能を持つことを示した。

さらに、市販の単結晶に本評価法を適用してその均質性を調べ、この結晶における化学組成比の分布は0.026 mol%以下であることを示した。このわずかな分布を従来の分析手法により詳細に検出することは困難である。

以上、LFB超音波顕微鏡による化学組成評価法を確立するとともに、その有用性を示した。

## 2章—4章の参考文献

- [1] S. Miyazawa and H. Iwasaki, "Congruent melting composition of Lithium metatantalate," *J. Cryst. Growth*, **10**, pp. 276-278 (1971).
- [2] M. Sato, A. Iwata, J. Yamada, M. Hikita, and Y. Furukawa, "SAW velocity variation of  $\text{LiTaO}_3$  substrates," *Japanese J. Appl. Phys.*, **28**, Suppl. 28-1, pp. 111-113 (1989).
- [3] T. Yamada, N. Niizeki, and H. Toyoda, "Curie Point and Lattice Constants of Lithium Tantalate," *Japanese J. Appl. Phys.*, **7**, pp. 298-299 (1968).
- [4] 石地 弘樹、「直線集束ビーム超音波顕微鏡による $\text{LiNbO}_3 \cdot \text{LiTaO}_3$ 単結晶の評価法に関する研究」、東北大学修士学位論文（平成6年2月）。
- [5] G. S. Kell, "Density, thermal expansivity, and compressibility of liquid water from  $0^\circ$  to  $150^\circ\text{C}$ : correlation and tables for atmospheric pressure and saturation reviewed and expressed on 1968 temperature scale", *J. Chem. & Engineer. Data* **20**, pp. 97-105 (1975).
- [6] P. Giacomo, "Equation for the determination of the density of moist air," *Metrologia*, **18**, pp. 33-40 (1982).
- [7] J. Kushibiki and N. Chubachi, "Material characterization by line-focus-beam acoustic microscope", *IEEE Trans. Sonics & Ultrason.* **SU-32**, pp. 189-212 (1985).
- [8] J. Kushibiki, H. Takahashi, T. Kobayashi, and N. Chubachi, "Quantitative evaluation of elastic properties of  $\text{LiTaO}_3$  crystals by line-focus-beam acoustic microscopy", *Appl. Phys. Lett.* **58**, pp. 893-895 (1991).
- [9] J. Kushibiki, H. Takahashi, T. Kobayashi, and N. Chubachi, "Characterization of  $\text{LiNbO}_3$  crystals by line-focus-beam acoustic microscopy", *Appl. Phys. Lett.* **58**, pp. 2622-2624 (1991).
- [10] J. Kushibiki, H. Ishiji, T. Kobayashi, N. Chubachi, I. Sahashi, and T. Sasamata, "Characterization of  $36^\circ\text{YX-LiTaO}_3$  wafers by line-focus-beam acoustic microscopy", *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelec., Freq. Contr.*, **42**, pp. 83-90 (1995).
- [11] J. Kushibiki, T. Kobayashi, H. Ishiji, and N. Chubachi, "Elastic properties of 5-mol%  $\text{MgO}$  doped  $\text{LiNbO}_3$  crystals measured by line-focus-beam acoustic microscopy", *Appl. Phys. Lett.* **61**, pp. 2164-2166 (1992).

- [12] 櫛引 淳一、松村 隆史、「直線集束ビーム超音波顕微鏡による光用  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  単結晶の音響的均質性の評価」、日本音響学会平成8年度春期講演論文集、pp. 981-982  
(平成8年3月)。
- [13] J. Kushibiki and M. Miyashita, "Characterization of domain-inverted layers in  $\text{LiTaO}_3$  by line-focus-beam acoustic microscopy," *Japanese J. Appl. Phys.*, **36**, pp. L959-L961 (1997).
- [14] W. Kroebel and K. H. Mahrt, "Recent results of absolute sound velocity measurements in pure water and sea water at atmospheric pressure," *Acustica*, **35**, pp. 154-164 (1976).
- [15] J. M. M. Pinkerton, "The absorption of ultrasonic waves in liquid and its relation to molecular constitution", *Proc. Phys. Soc.* **20**, pp. 129-141 (1949).
- [16] 青木 寧、「高速フーリエ変換法による超音波顕微鏡の $V(z)$ 曲線の解析に関する研究」、東北大学卒業論文(昭和59年3月)。
- [17] J. Kushibiki, T. Sannomiya, and N. Chubachi, "A useful acoustic measurement system for pulse mode in VHF and UHF ranges," *IEEE Trans. Son. Ultrason.*, **SU-29**, pp. 338-342 (1982).
- [18] 櫛引 淳一、小野 雄、中鉢 憲賢、「新しい高性能直線集束ビーム超音波顕微鏡システムの開発」、日本音響学会平成8年度春期講演論文集、pp. 985-986  
(平成8年3月)。
- [19] 荒川 元孝、櫛引 淳一、「標準試料を用いた直線集束ビーム超音波顕微鏡システムの校正」、電気学会、計測研究会、IM-96-90、pp. 11-21、(平成8年11月)。
- [20] 松村 隆史、「直線集束ビーム超音波顕微鏡による $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 単結晶の音響特性とその均質性の評価に関する研究」、東北大学修士学位論文(平成9年2月)。
- [21] 荒川 元孝、櫛引 淳一、中鉢 憲賢、「バルク超音波パルス干渉法による非圧電立方晶単結晶の弾性定数の決定」、電子情報通信学会技術報告、**US94-54**、pp. 51-58 (平成6年9月)。



## 2 章— 4 章の付録

### A : ICP-AES法による化学組成分析について

#### (1) 標準試料溶液の作製

##### ・ Liの標準溶液

標準試料は $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 粉末（市販の特級品）である。これを以下のように溶解・調整した。

$\text{Li}_2\text{CO}_3$  536.0 mgをビーカーに入れる

←蒸留水30 cc

↓←(1+1) $\text{HNO}_3$  3 ml（少しずつ入れる）

↓ガスバーナで加熱して溶解… $\text{CO}_2$ の除去

↓蒸留水を加えて100 mlに秤量…1.0069 mgLi/ml

↓10 ml分取

↓蒸留水を加えて100 mlに秤量

Liの含有量が0.10069 mg/mlの標準試料溶液の完成。

##### ・ Taの標準溶液

標準試料はTaの金属片（純度99.99 %）である。これを以下のように溶解・調整した。

metal Ta 145.5 mgをテフロンビーカーに入れる

↓←HF

↓← $\text{HNO}_3$ （数滴）

↓加熱溶解

↓←(1+1) $\text{H}_2\text{SO}_4$  20 ml

↓白煙がでるまで加熱…HF、 $\text{HNO}_3$ の除去

↓冷却

↓← $\text{H}_2\text{O}_2$  2ml（Taの加水分解を防ぐため）

↓蒸留水を加えて100 mlに秤量

Taの含有量が1.45 mg/mlの標準試料溶液の完成。この溶液は1mlあたり  
 $\text{H}_2\text{SO}_4$ を0.206 g、 $\text{H}_2\text{O}_2$ を0.02 ml含む。

## (2) 内標準法について

ICP-AES法による化学組成分析において試料の溶解が適切になされた場合、分析値に含まれる誤差の要因としては次の二つが考えられる。

1、プラズマの揺れによる測定値のばらつき

2、標準試料溶液と未知試料溶液の粘性の差によるプラズマ中への試料導入量の差

これらの影響を抑えるためには、分析に供するすべての溶液に一定量の基準物質（内標準元素）を混ぜて分析を行なうとよい。上記2つの影響は未知試料と基準物質の両方に同じように寄与する。したがってこれらの発光強度の比をとることでこれらの影響を除去した分析を行なうことが可能である。この分析手法を内標準法という。

## B：理論計算に用いた弾性関連物理定数

弾性定数 [ $\times 10^{11}$ N/m <sup>2</sup> ]	$c_{11}^E$	2.331
	$c_{12}^E$	0.464
	$c_{13}^E$	0.832
	$c_{14}^E$	-0.108
	$c_{33}^E$	2.748
	$c_{44}^E$	0.953
圧電定数 [C/m <sup>2</sup> ]	$e_{15}$	2.63
	$e_{22}$	1.84
	$e_{31}$	-0.11
	$e_{33}$	1.93
誘電率	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	42.1
	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	43.6
密度 [kg/m <sup>3</sup> ]	$\rho$	7460.7

## 5. 圧電性層状構造試料における漏洩弾性表面波の伝搬特性解析

### 5-1 まえがき

LFB超音波顕微鏡により層状構造試料の特性解析・評価を行なう場合、層状構造試料表面を伝搬する漏洩弾性波の伝搬特性を数値解析によりあらかじめ把握しておくことが重要である。本研究で試料として用いるプロトン交換 $\text{LiNbO}_3$ 、 $\text{LiTaO}_3$ 光導波路は、プロトン交換層、基板とも圧電性を有すると考えられ[1]、解析モデルとして圧電性薄膜／圧電性基板構造と考えられる。同構造の自由表面を伝搬するSAWに対する理論・数値解析に関しては、Farnellらが解析法を示し[2]、艾莉らが分極反転層を有する $\text{LiTaO}_3$ 回転Y板におけるSHタイプ表面波やレイリー波の伝搬特性およびフィールド分布の数値計算結果について報告している[3]。しかし、水が付加した場合の同構造表面を伝搬する漏洩弾性波に対しては、解析法は示されている[4]が数値計算に関する報告はない。

ところで、LFB超音波顕微鏡により測定した漏洩弾性波の伝搬特性から表面層の弾性定数や厚さを理論・数値解析により決定する方法が等方性薄膜に対して示されている[5]。将来、この方法を拡張して圧電性基板上に形成された圧電性薄膜の弾性関連定数(弾性定数、圧電定数、誘電率、密度)や厚さを決定することを考える場合、圧電性薄膜／圧電性基板構造における漏洩弾性波の伝搬特性の理論・数値解析が必要である。

そこで本章では、圧電性層状構造試料における漏洩弾性波の伝搬特性を数値解析により把握し、圧電性基板上に形成された圧電性薄膜の弾性関連定数や厚さを決定する方法を考える場合に必要となる理論・数値解析の基礎を築く。具体的には、最も簡単な圧電性層状構造モデルである水／圧電性薄膜／圧電性基板構造における漏洩弾性波の伝搬特性の数値解析を行なう。さらに、計算した伝搬特性を解釈するためにフィールド分布の数値計算を行なう。

数値計算にあたり、プロトン交換層の弾性関連定数は報告されている[6-8]が、これらの定数はその測定法や精度あるいは解析モデルに疑問があり、本研究では用いないこととした。そこで、プロトン交換層におけるSAWおよびLSAWの位相速度が低下する[9-12]ことから、表面層が形成されたために漏洩弾性波の位相速度が低下する構造として、光導波型デバイスを構成する構造として研究に用いられる $\text{LiTaO}_3$ 薄膜／ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造、および分極反転層を有する $\text{LiTaO}_3$ 基板構造を取り上げる。 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜／ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造のような、上層媒質における横波速度

が下層媒質における横波速度より遅い構造の場合、振動形態の異なる複数の高次の伝搬モードが存在するが、ここでは基本的な伝搬モードである漏洩レイリーモードについて数値計算を行なう。

まず、5-2節で水／圧電性薄膜／圧電性基板構造における漏洩弾性波の理論解析法を示す。5-3節では各構造において漏洩レイリーモードについて計算した結果を示す。5-3-1節で伝搬特性、5-3-2節でフィールド分布の計算結果を示す。また、5-3-1節で示した伝搬特性について検討を行なう。

## 5-2 水／圧電性薄膜／圧電性結晶基板構造における理論解析法

本節では、Campbellらの手法[13]を適用して、Farnellらが示した層状構造媒質の自由表面を伝搬するSAWに対する解析手法[2]を漏洩弾性波に拡張した解析法を示す。図5-1は理論計算に用いた層状構造モデルおよび座標系である。領域Iは粘性のない理想流体であるとし、領域IIおよびIIIは無損失の圧電性を有する弾性的異方性媒質であると仮定する。また、領域IIの薄膜の材料定数は膜厚Hに依存しないものとする。なお、漏洩弾性波の伝搬速度は電磁波の伝搬速度と比較して $10^{-5}$ 倍程度と十分遅いので、以下の解析では電磁界は静電界近似により準静電的に取り扱う。表5-1に理論計算に用いる変数を示す。これらの変数は簡略化表記法による[14]。

表5-1 理論計算に用いる変数

弾性スティフネス テンソル	$c$	粒子変位ベクトル	$U$
圧電テンソル	$e$	複素波数	$k$
誘電率テンソル	$\epsilon$	応力テンソル	$T$
密度	$\rho$	歪テンソル	$S$
超音波角周波数	$\omega$	電束密度ベクトル	$D$
ポテンシャル	$\Phi$	電界ベクトル	$E$

圧電体中を伝搬する弾性波を記述する基本式は以下のように与えられる。

構成方程式

$$T^m = c^{m'} : S^m - e^{m'} \cdot E^m \tag{5-1}$$

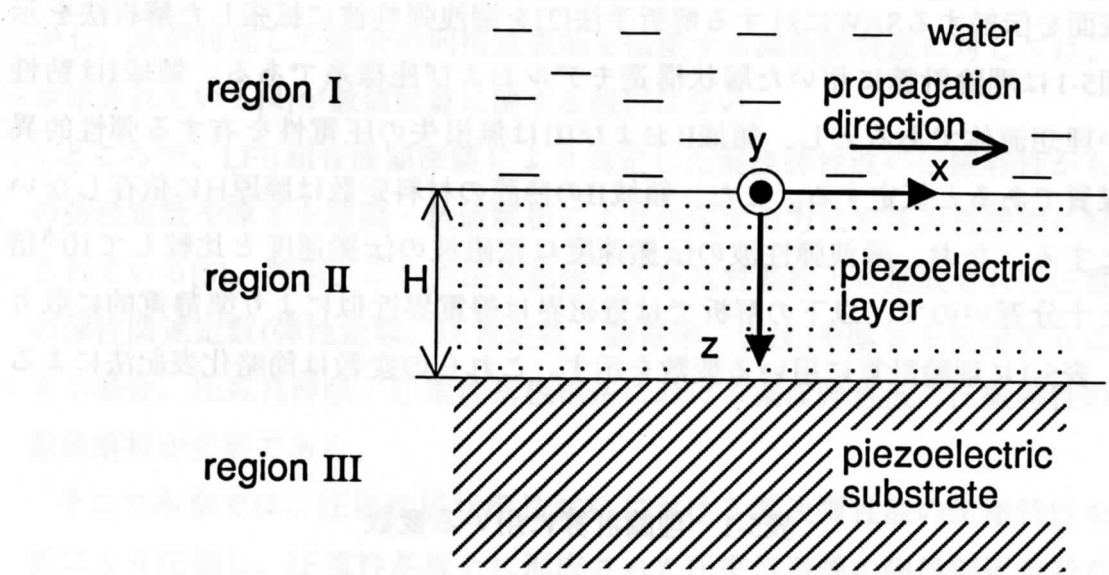


図5-1 漏洩弾性波の理論解析に用いた層状構造モデルと座標系

$$D^m = e^{m'} : S^m + \varepsilon^{m'} \cdot E^m \quad (5-2)$$

$$\text{歪みと粒子変位の関係式} \quad S^m = \nabla_s U^m \quad (5-3)$$

$$\text{運動方程式} \quad \nabla \cdot T^m = \rho^m \frac{\partial^2 U^m}{\partial t^2} \quad (5-4)$$

$$\text{静電基本式} \quad E^m = - \text{grad } \Phi^m \quad (5-5)$$

$$\text{div } D^m = 0 \quad (5-6)$$

(ただし、 $m=I, II, III$ )

ここで、 $m$ は各領域(I, II, III)における材料定数および場の量を区別するための添字である。また、 $\nabla_s$ 、 $\nabla \cdot$ は微分演算子行列[14]である。弾性スティフネス、圧電、誘電率の各テンソルのプライム(')は、結晶軸と一致した座標系で記述したものを、所望の伝搬面および伝搬方向に対応する座標変換を施したものであることを表わす記号である。以下このプライム(')は省略する。

媒質中を $x$ 方向に伝搬する漏洩弾性波の粒子変位ベクトルの各成分およびポテンシャルを次のようなpartial waveの解の線形結合で表わされると仮定する。

$$U_p^m = u_p^m \exp\{j(\beta^m kz + kx - \omega t)\} \quad (p=x, y, z) \quad (5-7)$$

$$\Phi^m = \phi^m \exp\{j(\beta^m kz + kx - \omega t)\} \quad (5-8)$$

ここで、 $u_p^m$ 、 $\phi^m$ は振幅係数、 $\beta^m$ は波数 $k$ で規格化した $z$ 方向の波数成分である。複素波数 $k$ は次式のように定義する。

$$k = \frac{\omega}{V} = k_\ell (1 + j\alpha_\ell), \quad V_\ell = \frac{\omega}{k_\ell} \quad (5-9)$$

ここで、 $k_\ell$ 、 $V_\ell$ 、 $\alpha_\ell$ はそれぞれ漏洩弾性波の波数、位相速度、規格化伝搬減衰である。式(5-7)、(5-8)を(5-1)～(5-6)に代入することにより式(5-10-1)のような $u_x^m$ 、 $u_y^m$ 、 $u_z^m$ 、および $\phi^m$ に対する連立方程式が得られる。

$$\left[ \begin{array}{c} A_{ij}^m \\ (i, j = 1, 2, 3, 4) \end{array} \right] \left[ \begin{array}{c} u_x^m \\ u_y^m \\ u_z^m \\ \phi^m \end{array} \right] = \left[ \begin{array}{c} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{array} \right] \quad (5-10-1)$$

ただし、

$$\begin{aligned}
 A_{11}^m &= c_{55}^m \beta^{m^2} + 2c_{15}^m \beta^m + c_{11}^m - \rho^m V^2 \\
 A_{12}^m &= c_{45}^m \beta^{m^2} + (c_{14}^m + c_{56}^m) \beta^m + c_{16}^m \\
 A_{13}^m &= c_{35}^m \beta^{m^2} + (c_{13}^m + c_{55}^m) \beta^m + c_{15}^m \\
 A_{14}^m &= e_{35}^m \beta^{m^2} + (e_{15}^m + e_{31}^m) \beta^m + e_{11}^m \\
 A_{21}^m &= A_{12}^m \\
 A_{22}^m &= c_{44}^m \beta^{m^2} + 2c_{46}^m \beta^m + c_{66}^m - \rho^m V^2 \\
 A_{23}^m &= c_{34}^m \beta^{m^2} + (c_{36}^m + c_{45}^m) \beta^m + c_{56}^m \\
 A_{24}^m &= e_{34}^m \beta^{m^2} + (e_{14}^m + e_{36}^m) \beta^m + e_{16}^m \\
 A_{31}^m &= A_{13}^m \\
 A_{32}^m &= A_{23}^m \\
 A_{33}^m &= c_{33}^m \beta^{m^2} + 2c_{35}^m \beta^m + c_{55}^m - \rho^m V^2 \\
 A_{34}^m &= e_{33}^m \beta^{m^2} + (e_{13}^m + e_{35}^m) \beta^m + e_{15}^m \\
 A_{41}^m &= A_{14}^m \\
 A_{42}^m &= A_{24}^m \\
 A_{43}^m &= A_{34}^m \\
 A_{44}^m &= -(\epsilon_{33}^m \beta^{m^2} + 2\epsilon_{13}^m \beta^m + \epsilon_{11}^m)
 \end{aligned} \tag{5-10-2}$$

式(5-10-1)において  $u_x^m$ 、 $u_y^m$ 、 $u_z^m$ 、 $\phi^m$  が自明でない解を持つためには次式を満たす必要がある。

$$\det(A_{ij}^m) = 0 \tag{5-11}$$

この係数行列式(5-11)は規格化波数  $\beta^m$  についての実係数8次多項式であり、この式から  $V$  をパラメータとする8つの複素数解  $\beta^m(n)$  ( $n=1, 2, \dots, 8$ ) が求められる。

各領域における各々の  $\beta^m(n)$  に対する partial wave の振幅係数  $u_x^m(n)$ 、 $u_y^m(n)$ 、 $u_z^m(n)$ 、 $\phi^m(n)$  は、式(5-10-1)の任意の3つの式を用いることによってその比を求めることができる。 $u_y^m(n)$ 、 $u_z^m(n)$ 、 $\phi^m(n)$  を  $u_x^m(n)$  で規格化しその比を次のようにおく。

$$\begin{aligned}
 F^m(n) &= \frac{u_y^m(n)}{u_x^m(n)} \\
 G^m(n) &= \frac{u_z^m(n)}{u_x^m(n)}
 \end{aligned} \tag{5-12}$$



$$H^m(n) = \frac{\phi^m(n)}{u_x^m(n)} \quad n = \begin{cases} 1 & (m = \text{I}) \\ 1, 2, \dots, 8 & (m = \text{II}) \\ 1, 2, 3, 4 & (m = \text{III}) \end{cases}$$

すると、各領域における漏洩弾性表面波の解は次のように表わされる。

#### 領域 I ( $z < 0$ )

水中では、 $u_y = 0$ であり、水中へ縦波を放射する物理的条件から

$$\text{Re}(j\beta^{\text{I}}(1)k) < 0 \quad (5-13)$$

を満たす解 $\beta^{\text{I}}(1)$ による partial wave のみが存在する。電磁界は粒子変位と結合しない。そのため $F^{\text{I}}(1)=0$ 、 $H^{\text{I}}(1)=0$ となる。ポテンシャルは $z=0$ で連続、 $z \rightarrow -\infty$ で0に収束するという条件から次式のようなになる。

$$\begin{aligned} U_x^{\text{I}} &= u_x^{\text{I}}(1) \exp\{j(\beta^{\text{I}}(1)kz + kx - \omega t)\} \\ U_z^{\text{I}} &= u_x^{\text{I}}(1) G^{\text{I}}(1) \exp\{j(\beta^{\text{I}}(1)kz + kx - \omega t)\} \\ \Phi^{\text{I}} &= \sum_{n=1}^8 u_x^{\text{II}}(n) H^{\text{II}}(n) \exp\{j(kx - \omega t)\} \exp(kz) \end{aligned} \quad (5-14)$$

#### 領域 II ( $0 < z < H$ )

薄膜中では粒子変位、ポテンシャルは8つの解 $\beta^{\text{II}}(n)$  ( $n=1, 2, \dots, 8$ )に対応する partial wave のすべての線形結合で次式のように表わされる。

$$\begin{aligned} U_x^{\text{II}} &= \sum_{n=1}^8 u_x^{\text{II}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{II}}(n)kz + kx - \omega t)\} \\ U_y^{\text{II}} &= \sum_{n=1}^8 u_x^{\text{II}}(n) F^{\text{II}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{II}}(n)kz + kx - \omega t)\} \\ U_z^{\text{II}} &= \sum_{n=1}^8 u_x^{\text{II}}(n) G^{\text{II}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{II}}(n)kz + kx - \omega t)\} \\ \Phi^{\text{II}} &= \sum_{n=1}^8 u_x^{\text{II}}(n) H^{\text{II}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{II}}(n)kz + kx - \omega t)\} \end{aligned} \quad (5-15)$$

#### 領域 III ( $H < z$ )

漏洩レイリーモードの場合、 $z \rightarrow \infty$ で場の量が0という物理的条件から、 $\beta^{\text{III}}(n)$



( $n=1, 2, \dots, 8$ ) の8つの解のうち次式を満たす4つの解を選択し、改めて  $\beta^{\text{III}}(n)$   $n=1, 2, 3, 4$  と番号をつける。

$$\text{Re}(j\beta^{\text{III}}(n)k) < 0 \quad (5-16)$$

したがって、基板中における粒子変位、ポテンシャルは式(5-16)を満たす4つの解  $\beta^{\text{III}}(n)$  ( $n=1, 2, 3, 4$ ) に対応する partial wave の線形結合で次式のように表わされる。

$$\begin{aligned} U_x^{\text{III}} &= \sum_{n=1}^4 u_x^{\text{III}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{III}}(n)kz + kx - \omega t)\} \\ U_y^{\text{III}} &= \sum_{n=1}^4 u_y^{\text{III}}(n) F^{\text{III}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{III}}(n)kz + kx - \omega t)\} \\ U_z^{\text{III}} &= \sum_{n=1}^4 u_z^{\text{III}}(n) G^{\text{III}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{III}}(n)kz + kx - \omega t)\} \\ \Phi^{\text{III}} &= \sum_{n=1}^4 u_\phi^{\text{III}}(n) H^{\text{III}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{III}}(n)kz + kx - \omega t)\} \end{aligned} \quad (5-17)$$

#### 境界条件

式(5-14)、(5-15)、(5-17)の粒子変位およびポテンシャルは以下に示す境界条件を満足しなければならない。

$z=0$  (水／薄膜境界)において、

$$\begin{aligned} U_z^{\text{I}} &= U_z^{\text{II}} \\ 0 &= T_{13}^{\text{II}} \\ 0 &= T_{23}^{\text{II}} \\ T_{33}^{\text{I}} &= T_{33}^{\text{II}} \\ E_x^{\text{I}} &= E_x^{\text{II}} \\ D_z^{\text{I}} &= D_z^{\text{II}} \end{aligned} \quad (5-18-1)$$

$z=H$  (薄膜／基板境界)において、

$$\begin{aligned} U_p^{\text{II}} &= U_p^{\text{III}} \quad (p = x, y, z) \\ T_{i3}^{\text{II}} &= T_{i3}^{\text{III}} \quad (i = 1, 2, 3) \\ E_x^{\text{II}} &= E_x^{\text{III}} \\ D_z^{\text{II}} &= D_z^{\text{III}} \end{aligned} \quad (5-18-2)$$

式(5-14)、(5-15)、(5-17)の粒子変位およびポテンシャルの解を式(5-1)～(5-3)、(5-5)、(5-6)に代入して応力 $T$ 、電界 $E$ 、電束密度 $D$ を求め、式(5-18-1)、(5-18-2)にこれらを代入すると次式のような連立方程式が得られる。

$$\begin{bmatrix} D_{ij} \\ (i, j = 1, \dots, 13) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} u_x^I(1) \\ u_x^{II}(1) \\ u_x^{II}(2) \\ u_x^{II}(3) \\ u_x^{II}(4) \\ u_x^{II}(5) \\ u_x^{II}(6) \\ u_x^{II}(7) \\ u_x^{II}(8) \\ u_x^{III}(1) \\ u_x^{III}(2) \\ u_x^{III}(3) \\ u_x^{III}(4) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5-19)$$

ここで、 $D_{ij}$ の詳細は省略する。各粒子変位 $u_x^I(1)$ 、 $u_x^{II}(n)$  ( $n=1, 2, \dots, 8$ )、 $u_x^{III}(n)$  ( $n=1, 2, 3, 4$ ) が自明な解以外を持つためには次式を満足する必要がある。

$$\det(D_{ij})=0 \quad (5-20)$$

式(5-20)は、超音波周波数を $f$ とすると、 $f$ と $H$ の積 $fH$ をパラメータとする $V$ に関する方程式である。式(5-20)を解析的に解くことはできないので、計算機を用いて数値計算により解を求める。具体的には、ある $fH$ において以下の手順で行なう。

1.  $V$ の値を式(5-11)に代入して各領域において解 $\beta^m(n)$ を求める。
2.  $\beta^m(n)$ を式(5-19)に代入して係数行列式 $\det(D_{ij})$ を計算する。
3. ニュートン法により $V$ を操作し、式(5-20)を満たすまで手順1, 2, 3を繰り返す。

以上により、漏洩弾性波の伝搬解 $V$ が求められ、式(5-9)より位相速度 $V_\ell$ 、規格化伝搬減衰 $\alpha_\ell$ が得られる。

### フィールド分布

式(5-20)の解となる $V$ が求まれば、式(5-11)から $\beta^m$ が決定できる。ここで、各 $\beta^m$ に対応するpartial waveの振幅係数 $u_x^I(1)$ 、 $u_x^{II}(n)$  ( $n=1, 2, \dots, 8$ )、 $u_x^{III}(n)$  ( $n=1, 2, 3, 4$ ) を $u_x^{II}(1)$ で規格化しその比を次式のようにおく。

$$\begin{aligned}
X^I(1) &= \frac{u_x^I(1)}{u_x^{II}(1)} \\
X^{II}(n) &= \frac{u_x^{II}(n)}{u_x^{II}(1)} \quad (n=1, 2, \dots, 8) \\
X^{III}(n) &= \frac{u_x^{III}(n)}{u_x^{II}(1)} \quad (n=1, 2, 3, 4)
\end{aligned} \tag{5-21}$$

すると、式(5-19)のうち任意の12個の式から式(5-21)を求めることができる。したがって、各領域中の粒子変位およびポテンシャルの相対値は以下ようになる。

領域 I ( $z < 0$ )

$$\begin{aligned}
U_x^I &= X^I(1) u_x^{II}(1) \exp\{j(\beta^I(1) kz + kx - \omega t)\} \\
U_z^I &= X^I(1) u_x^{II}(1) G^I(1) \exp\{j(\beta^I(1) kz + kx - \omega t)\} \\
\Phi^I &= \sum_{n=1}^8 X^{II}(n) u_x^{II}(1) H^{II}(n) \exp\{j(kx - \omega t)\} \exp(kz)
\end{aligned} \tag{5-22}$$

領域 II ( $0 < z < H$ )

$$\begin{aligned}
U_x^{II} &= \sum_{n=1}^8 X^{II}(n) u_x^{II}(1) \exp\{j(\beta^{II}(n) kz + kx - \omega t)\} \\
U_y^{II} &= \sum_{n=1}^8 X^{II}(n) u_x^{II}(1) F^{II}(n) \exp\{j(\beta^{II}(n) kz + kx - \omega t)\} \\
U_z^{II} &= \sum_{n=1}^8 X^{II}(n) u_x^{II}(1) G^{II}(n) \exp\{j(\beta^{II}(n) kz + kx - \omega t)\} \\
\Phi^{II} &= \sum_{n=1}^8 X^{II}(n) u_x^{II}(1) H^{II}(n) \exp\{j(\beta^{II}(n) kz + kx - \omega t)\}
\end{aligned} \tag{5-23}$$

領域 III ( $H < z$ )

$$\begin{aligned}
U_x^{III} &= \sum_{n=1}^4 X^{III}(n) u_x^{II}(1) \exp\{j(\beta^{III}(n) kz + kx - \omega t)\} \\
U_y^{III} &= \sum_{n=1}^4 X^{III}(n) u_x^{II}(1) F^{III}(n) \exp\{j(\beta^{III}(n) kz + kx - \omega t)\} \\
U_z^{III} &= \sum_{n=1}^4 X^{III}(n) u_x^{II}(1) G^{III}(n) \exp\{j(\beta^{III}(n) kz + kx - \omega t)\}
\end{aligned} \tag{5-24}$$

$$\Phi^{\text{III}} = \sum_{n=1}^4 X^{\text{III}}(n) u_x^{\text{II}}(1) H^{\text{III}}(n) \exp\{j(\beta^{\text{III}}(n) kz + kx - \omega t)\}$$

応力 $T$ 、歪 $S$ 、電束密度 $D$ 、電界 $E$ に対する解は式(5-22)～(5-24)を式(5-3)、(5-5)、(5-1)、(5-2)に代入することにより求められる。さらに、複素ポインティングベクトル[40]は、領域Ⅰの水中では粒子変位は電磁界と結合しないので次式のようになる。

$$P = -\frac{\mathbf{v}^* \cdot \mathbf{T}}{2} \quad (5-25)$$

領域Ⅱ、Ⅲの圧電体中では、

$$P = -\frac{\mathbf{v}^* \cdot \mathbf{T}}{2} + \frac{\Phi \cdot (-j\omega D)^*}{2} \quad (5-26)$$

のようになる。ここで、アスタリスク(\*)はベクトル要素の複素共役を表わす。 $\mathbf{v}$ は粒子の変位速度ベクトルであり、次式で与えられる。

$$\mathbf{v} = \frac{\partial \mathbf{U}}{\partial t} \quad (5-27)$$

上述の解析法は、水／圧電性薄膜／圧電性基板構造におけるものであるが、境界条件を適当に拡張することによって、多層構造における解析法へ拡張できる。また、伝搬モードについては、LFB超音波顕微鏡による $V(z)$ 曲線の測定において最も重要な漏洩レイリーモードについて示したが、固体中にエネルギーを放射しながら伝搬する漏洩擬似弾性表面波モードも重要な役割を果たす場合がある。その解析法は、上述の手順と全く同様であるが、式(5-16)の基板中における解の選択条件式を物理的条件にあわせて適当に設定する必要がある。

### 5-3 数値計算結果

本節では、前節に示した解析法にしたがって、 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜/ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造、および分極反転層を有する $\text{LiTaO}_3$ 基板に対して、漏洩レイリーモードの伝搬特性およびフィールド分布を数値計算した結果を示す。本研究では試料としてZ-cut  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 、Z-cut  $\text{LiTaO}_3$ 基板を用いることから、計算面はZ面とし、伝搬方向はX軸およびY軸方向伝搬とした。計算に用いた $\text{LiTaO}_3$ 、 $\text{LiNbO}_3$ の材料定数[15]および水の物理定数[16, 17]を付録に示す。

#### 5-3-1 漏洩レイリーモードの伝搬特性

##### 5-3-1-1 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜/ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造

図5-2にZ-cut Y方向伝搬における計算結果を示す。Y方向伝搬ではPure Rayleigh mode となる。同図(a)は位相速度、同図(b)は規格化伝搬減衰の $fH$ 依存性である。 $fH=0\text{Hz}\cdot\text{m}$ で位相速度は $3879.12\text{m/s}$ 、規格化伝搬減衰は $1.481\times 10^{-2}$ であり、Z-cut Y方向伝搬の $\text{LiNbO}_3$ 基板における伝搬特性に一致する。位相速度は $fH$ が大きくなると $\text{LiTaO}_3$ 薄膜の弾性特性を反映して単調に低下し、 $fH\rightarrow\infty$ でZ-cut Y方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 基板における位相速度 $3318.45\text{ m/s}$ に漸近する。規格化伝搬減衰は $fH$ が大きくなると増加し $fH=400\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近で極大となる。さらに $fH$ が大きくなると単調に減少し、 $fH\rightarrow\infty$ でZ-cut Y方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 基板における規格化伝搬減衰 $1.093\times 10^{-2}$ に漸近する。

図5-3にZ-cut X方向伝搬における計算結果を示す。X方向伝搬ではGeneral Rayleigh mode となる。同図(a)は位相速度の、同図(b)は規格化伝搬減衰の $fH$ 依存性である。 $fH=0\text{Hz}\cdot\text{m}$ で位相速度は $3795.65\text{m/s}$ 、規格化伝搬減衰は $1.299\times 10^{-2}$ であり、Z-cut X方向伝搬の $\text{LiNbO}_3$ 基板における伝搬特性に一致する。位相速度は $fH$ が大きくなると $\text{LiTaO}_3$ 薄膜の弾性特性を反映して単調に低下し、 $fH\rightarrow\infty$ でZ-cut X方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 基板における位相速度 $3204.33\text{m/s}$ に漸近する。規格化伝搬減衰は $fH$ が大きくなると増加し $fH=420\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近で極大となる。さらに $fH$ が大きくなると単調に減少し、 $fH\rightarrow\infty$ でZ-cut X方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 基板における規格化伝搬減衰 $7.905\times 10^{-3}$ に漸近する。

位相速度、規格化伝搬減衰とも、 $fH$ による変化の傾向は伝搬方向によらず似ている。 $fH$ が大きくなると、 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜の弾性特性を反映して変化することが分かる。

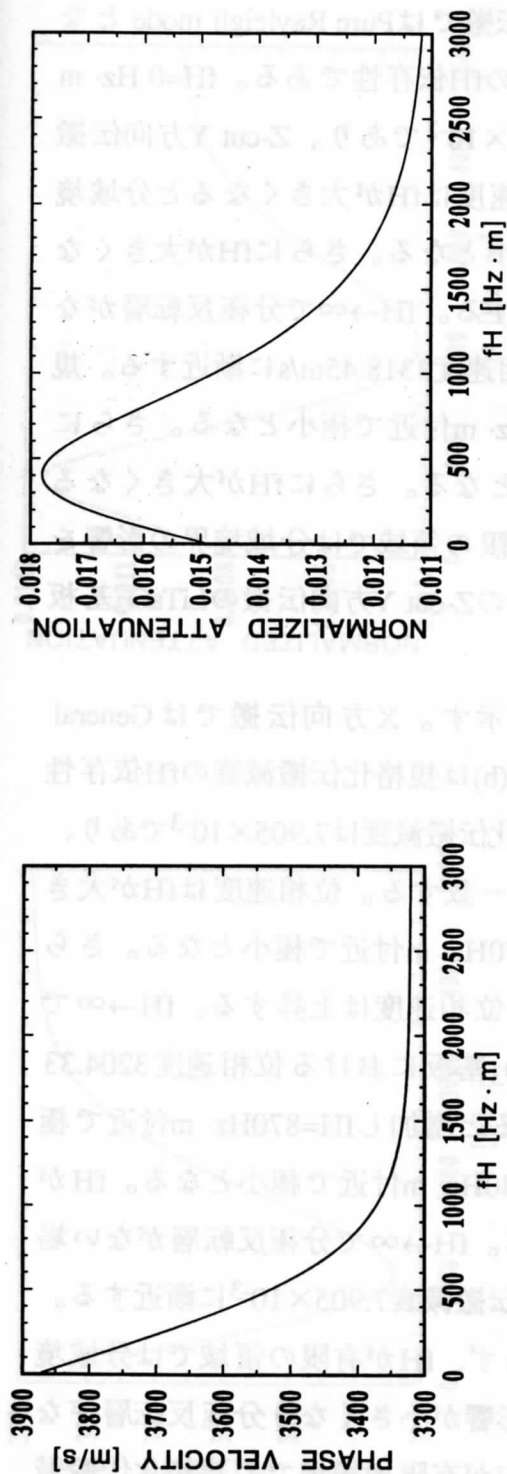


図5-2 ZY-LiTaO<sub>3</sub>薄膜／ZY-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの伝搬特性の計算結果  
(a) 位相速度 (b) 規格化伝搬減衰

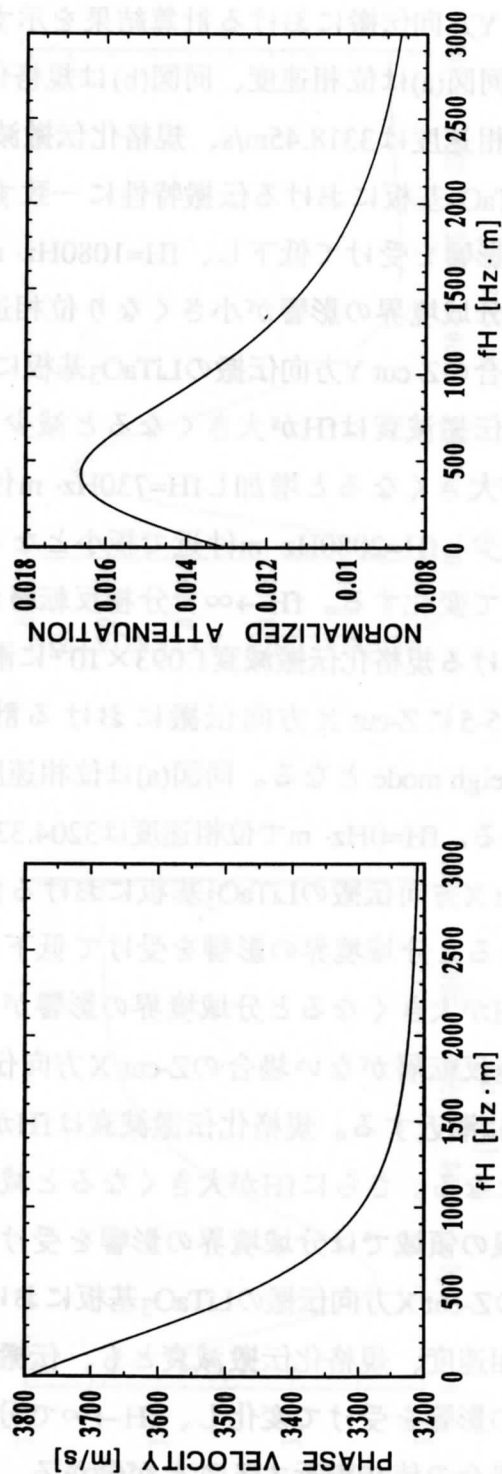


図5-3 ZX-LiTaO<sub>3</sub>薄膜／ZX-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの伝搬特性の計算結果  
(a) 位相速度 (b) 規格化伝搬減衰



### 5-3-1-2 分極反転層を有するLiTaO<sub>3</sub>基板構造

数値計算において分極反転層の材料定数は、圧電定数の符号が異なる以外は基板の定数と同じとした。つまり薄膜と基板の境界は分域境界に対応する。図5-4にZ-cut Y方向伝搬における計算結果を示す。Y方向伝搬ではPure Rayleigh modeとなる。同図(a)は位相速度、同図(b)は規格化伝搬減衰の $fH$ 依存性である。 $fH=0 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ で位相速度は3318.45m/s、規格化伝搬減衰は $1.093 \times 10^{-2}$ であり、Z-cut Y方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板における伝搬特性に一致する。位相速度は $fH$ が大きくなると分域境界の影響を受けて低下し、 $fH=1080 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ 付近で極小となる。さらに $fH$ が大きくなると分域境界の影響が小さくなり位相速度は上昇する。 $fH \rightarrow \infty$ で分極反転層がない場合のZ-cut Y方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板における位相速度3318.45m/sに漸近する。規格化伝搬減衰は $fH$ が大きくなると減少し $fH=150 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ 付近で極小となる。さらに $fH$ が大きくなると増加し $fH=730 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ 付近で極大となる。さらに $fH$ が大きくなると減少し $fH=2080 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ 付近で極小となる。 $fH$ が有限の領域では分域境界の影響を受けて変化する。 $fH \rightarrow \infty$ で分極反転層がない場合のZ-cut Y方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板における規格化伝搬減衰 $1.093 \times 10^{-2}$ に漸近する。

図5-5にZ-cut X方向伝搬における計算結果を示す。X方向伝搬ではGeneral Rayleigh modeとなる。同図(a)は位相速度の、同図(b)は規格化伝搬減衰の $fH$ 依存性である。 $fH=0 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ で位相速度は3204.33m/s、規格化伝搬減衰は $7.905 \times 10^{-3}$ であり、Z-cut X方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板における伝搬特性に一致する。位相速度は $fH$ が大きくなると分域境界の影響を受けて低下し、 $fH=1070 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ 付近で極小となる。さらに $fH$ が大きくなると分域境界の影響が小さくなり位相速度は上昇する。 $fH \rightarrow \infty$ で分極反転層がない場合のZ-cut X方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板における位相速度3204.33 m/sに漸近する。規格化伝搬減衰は $fH$ が大きくなると増加し $fH=870 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ 付近で極大となる。さらに $fH$ が大きくなると減少し $fH=2940 \text{ Hz} \cdot \text{m}$ 付近で極小となる。 $fH$ が有限の領域では分域境界の影響を受けて変化する。 $fH \rightarrow \infty$ で分極反転層がない場合のZ-cut X方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板における規格化伝搬減衰 $7.905 \times 10^{-3}$ に漸近する。位相速度、規格化伝搬減衰とも、伝搬方向によらず、 $fH$ が有限の領域では分域境界の影響を受けて変化する。 $fH \rightarrow \infty$ で分域境界の影響が小さくなり分極反転層がない場合の値に漸近することが分かる。しかし、 $fH$ が有限の領域での規格化伝搬減衰の変化の傾向は伝搬方向により異なる。

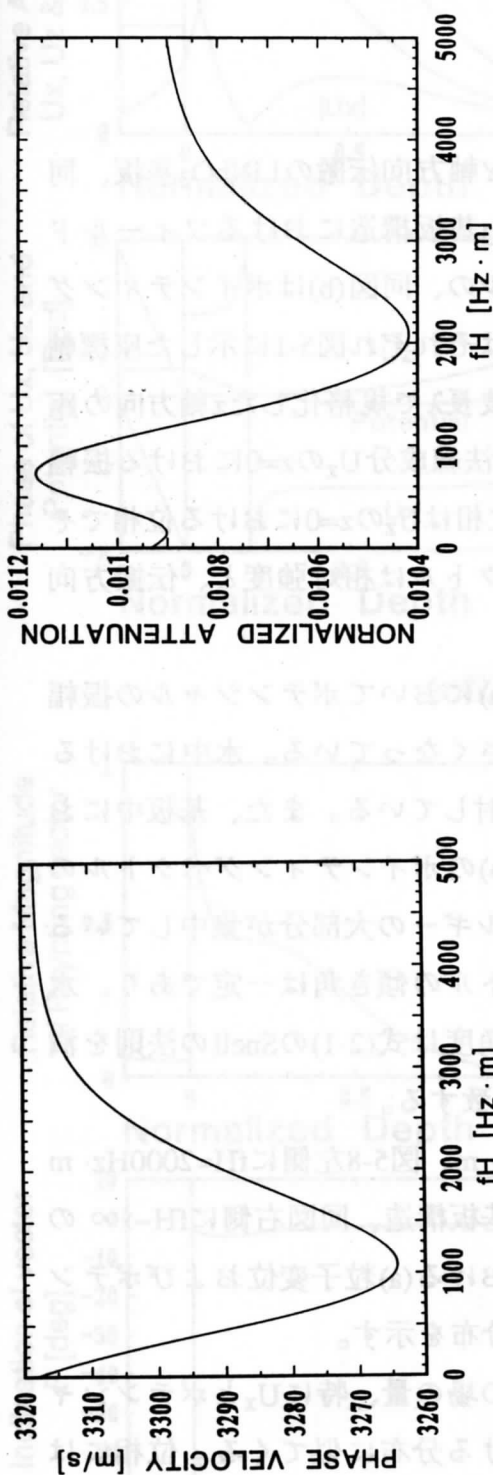


図5-4 分極反転層を有するZY-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリモードの伝搬特性の計算結果  
(a) 位相速度  
(b) 規格化伝搬減衰

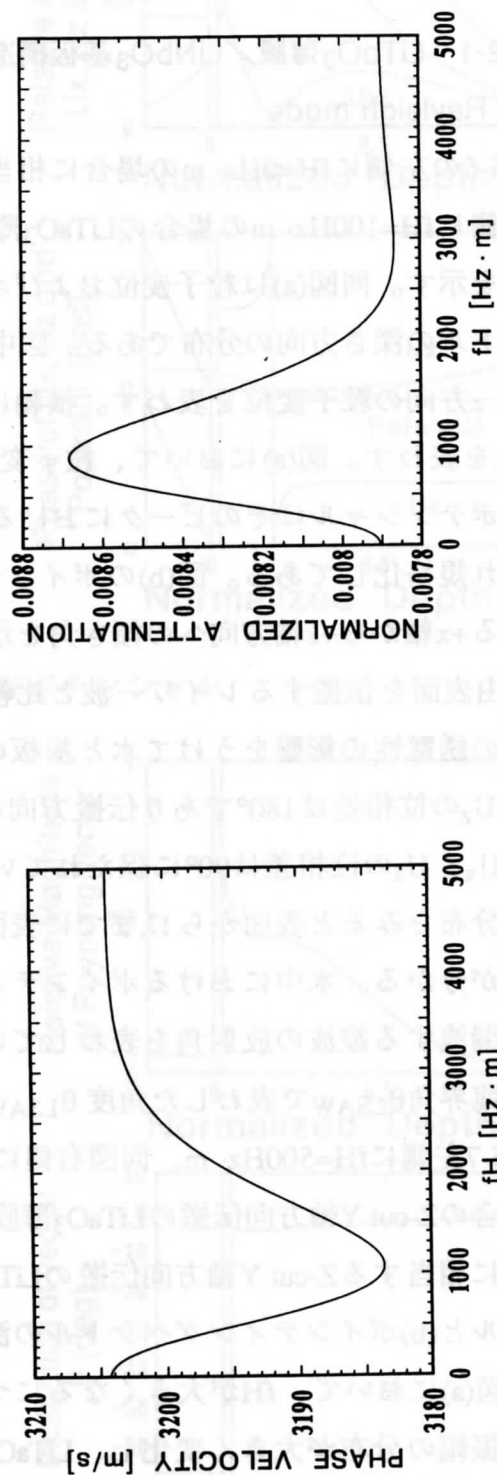


図5-5 分極反転層を有するZX-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリモードの伝搬特性の計算結果  
(a) 位相速度  
(b) 規格化伝搬減衰



### 5-3-2 漏洩レイリーモードのフィールド分布

前節で計算した漏洩レイリーモードの伝搬特性を解釈するために、同モードのフィールド分布の数値計算を行なった。以下にその計算結果を示す。

#### 5-3-2-1 LiTaO<sub>3</sub>薄膜/LiNbO<sub>3</sub>基板構造

##### Pure Rayleigh mode

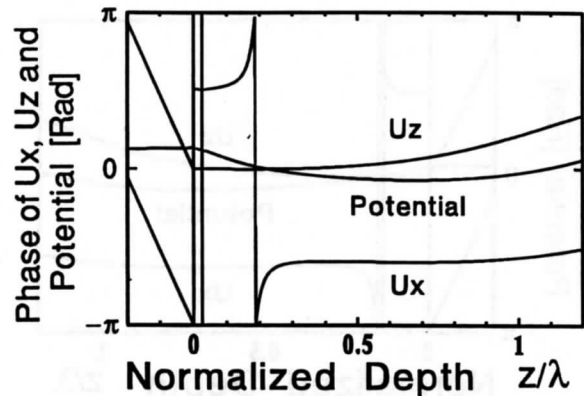
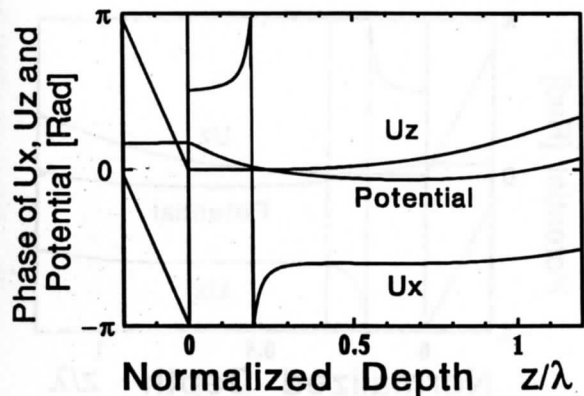
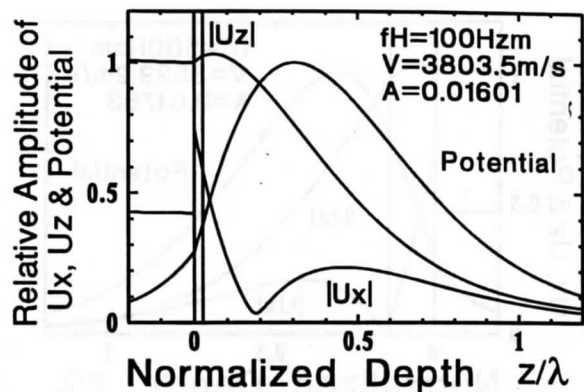
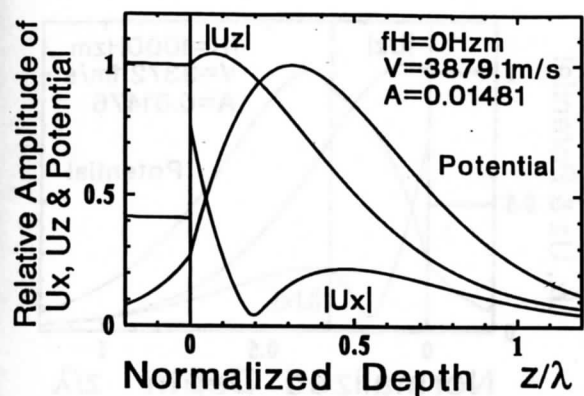
図5-6の左側に $fH=0\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合に相当するZ-cut Y軸方向伝搬のLiNbO<sub>3</sub>基板、同図右側に $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合のLiTaO<sub>3</sub>薄膜/LiNbO<sub>3</sub>基板構造におけるフィールド分布を示す。同図(a)は粒子変位およびポテンシャルの、同図(b)はポインティングベクトルの深さ方向の分布である。図中の $U_x$ 、 $U_z$ はそれぞれ図5-1に示した座標軸の $x$ 、 $z$ 方向の粒子変位を表わす。横軸は表面波の波長 $\lambda$ で規格化した $z$ 軸方向の距離 $z/\lambda$ を表わす。図(a)において、粒子変位の振幅は法線成分 $U_z$ の $z=0$ における振幅で、ポテンシャルはそのピークにおける振幅で、位相は $U_z$ の $z=0$ における位相でそれぞれ規格化してある。図(b)のポインティングベクトルは相対強度と、伝搬方向である $+x$ 軸から $+z$ 軸方向への傾き角を示した。

自由表面を伝搬するレイリー波と比較して、図(a)においてポテンシャルの振幅は水の誘電性の影響をうけて水と基板の境界で小さくなっている。水中における $U_x$ 、 $U_z$ の位相差は $180^\circ$ であり伝搬方向に縦波を放射している。また、基板中における $U_x$ 、 $U_z$ の位相差は $90^\circ$ に保たれていない。図(b)のポインティングベクトルの強度分布をみると表面から $1\lambda$ までに表面波のエネルギーの大部分が集中していることが分かる。水中におけるポインティングベクトルの傾き角は一定であり、水中に漏洩する縦波の放射角を表わしている。この角度は式(2-1)のSnellの法則を満たす臨界角 $\theta_{\text{LSAW}}$ で表わした角度 $\theta_{\text{LSAW}} - 90^\circ$ に一致する。

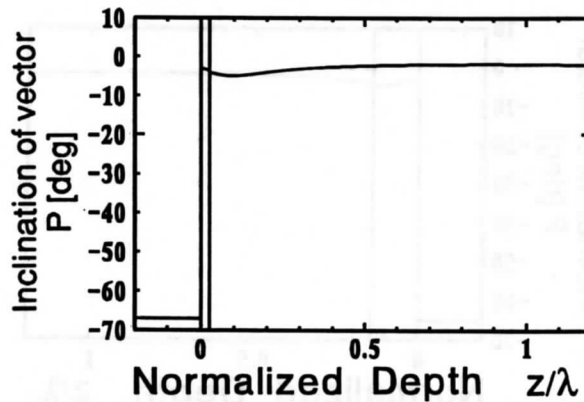
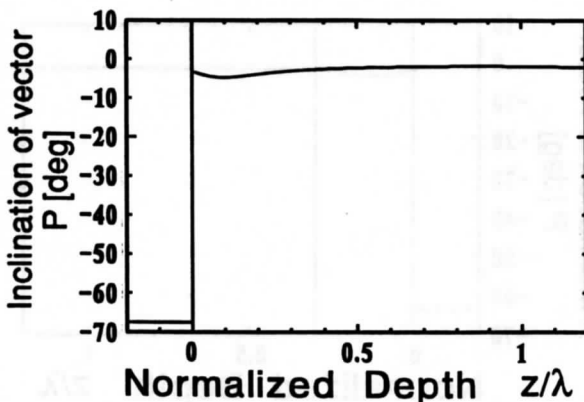
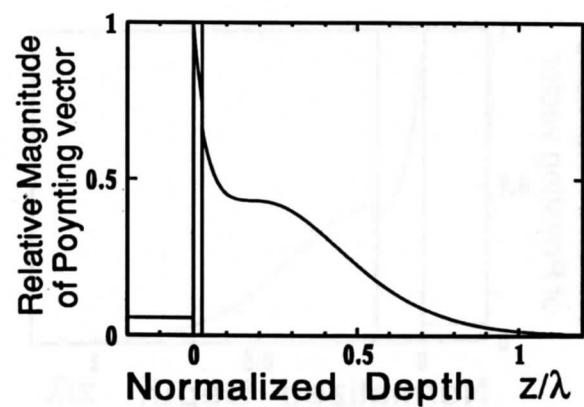
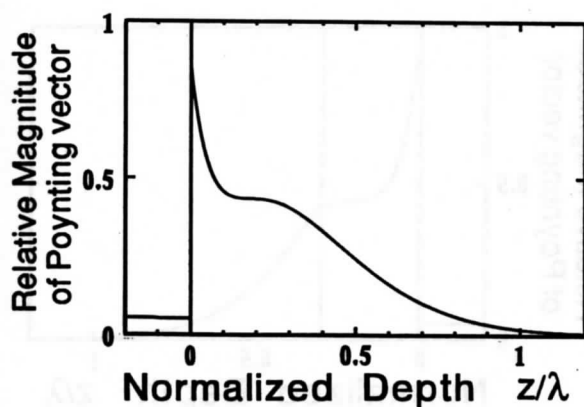
図5-7左側に $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、同図右側に $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-8左側に $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合のZ-cut Y軸方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>薄膜/LiNbO<sub>3</sub>基板構造、同図右側に $fH \rightarrow \infty$ の場合に相当するZ-cut Y軸方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板における(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布を示す。

各図(a)において、 $fH$ が大きくなるにつれ、全ての場の量、特に $U_x$ とポテンシャルの振幅の分布が大きく変化し、LiTaO<sub>3</sub>基板における分布に似てくる。位相には特に大きな変化は見られない。

各図(b)において、 $fH$ が大きくなると薄膜領域に表面波のエネルギーが集中する。ポインティングベクトルの傾き角の符号は薄膜と基板中のどの深さでも負であり、

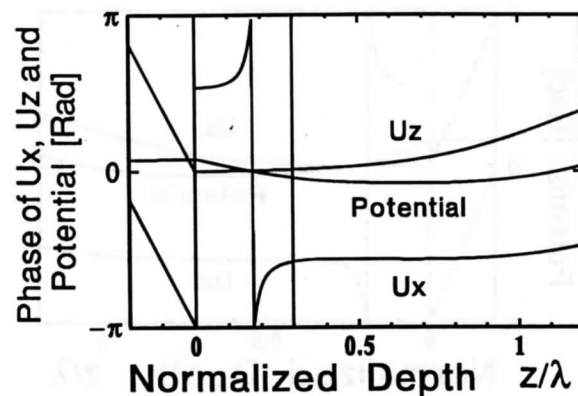
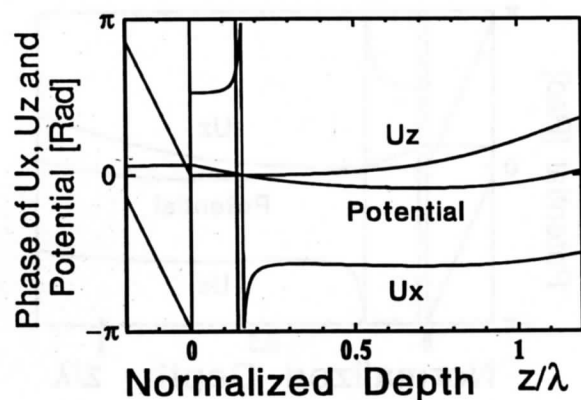
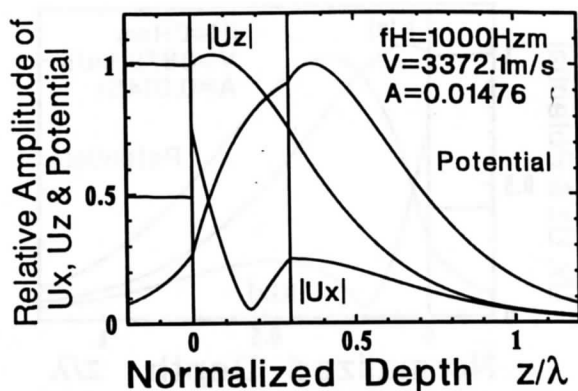
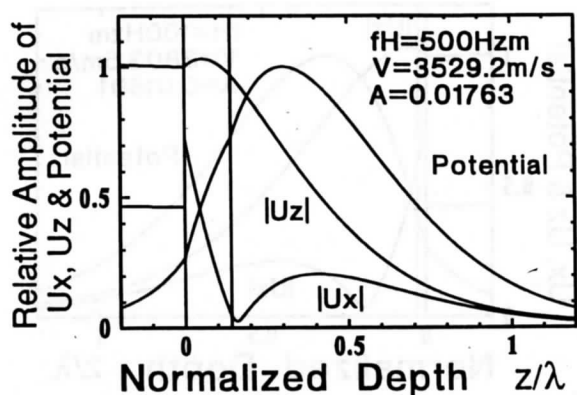


(a)粒子変位およびポテンシャル

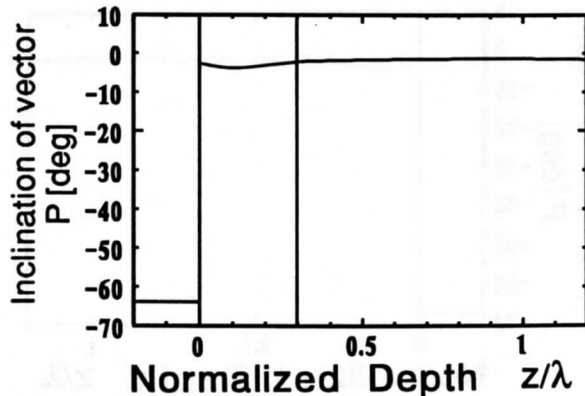
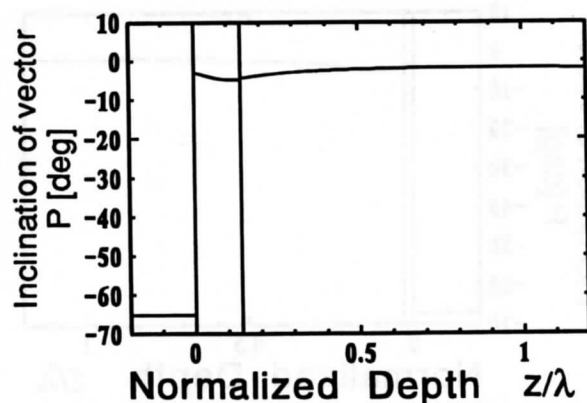
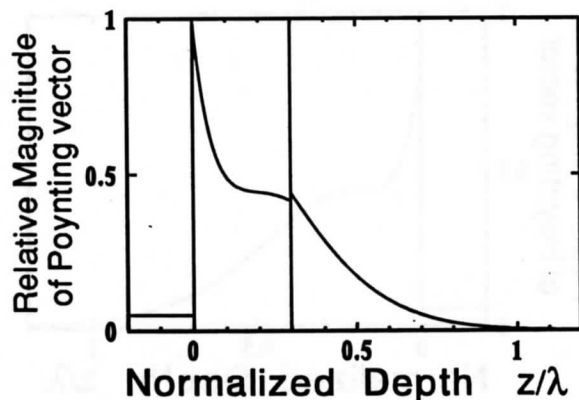
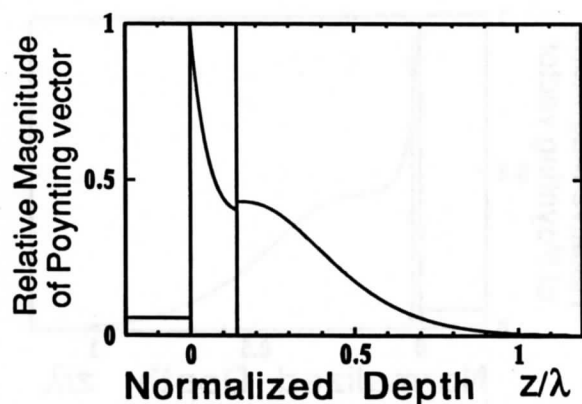


(b)ポインティングベクトル

図5-6 ZY-LiTaO<sub>3</sub>薄膜/ZY-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=0\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ )

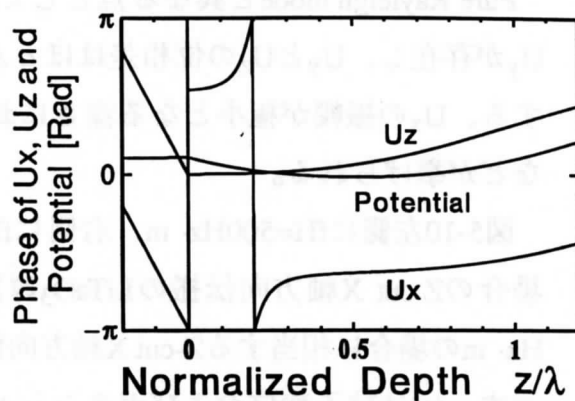
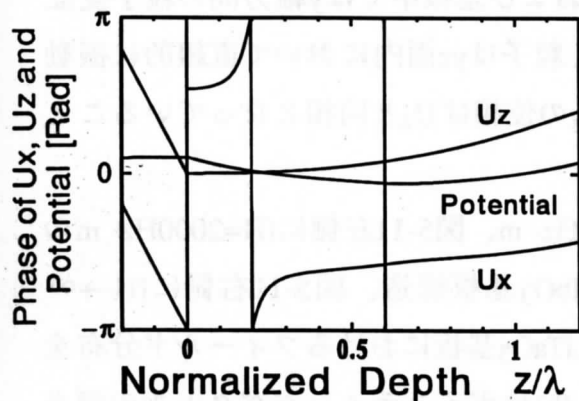
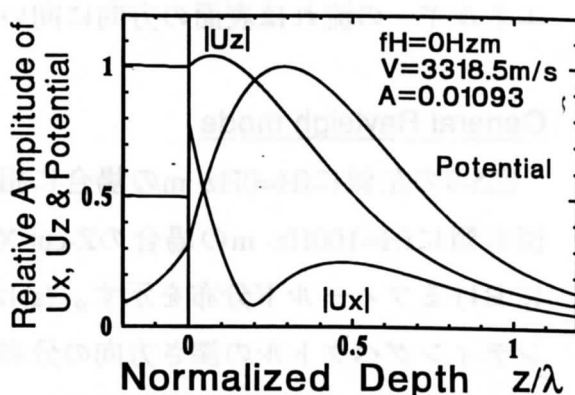
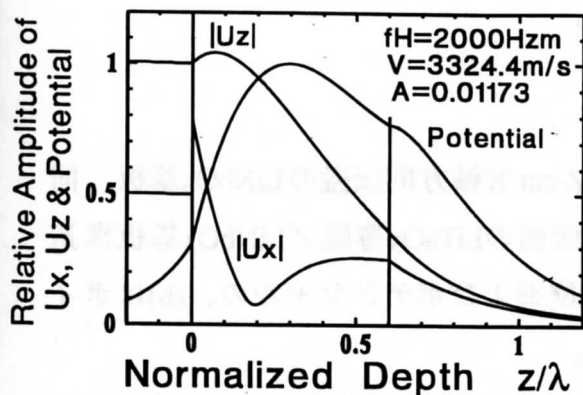


(a)粒子変位およびポテンシャル

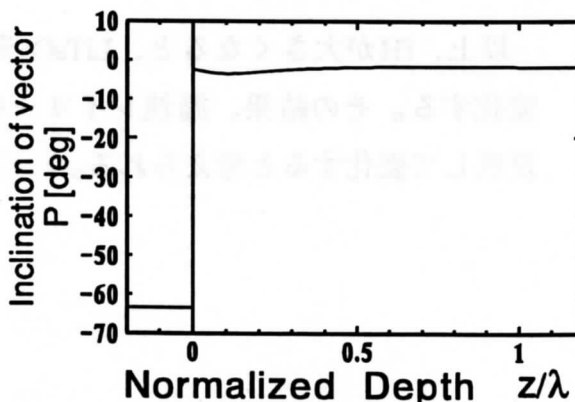
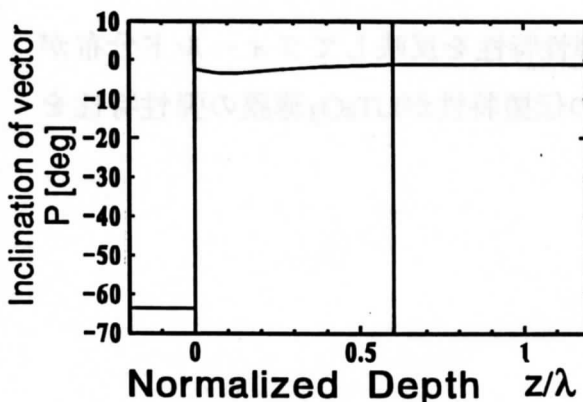
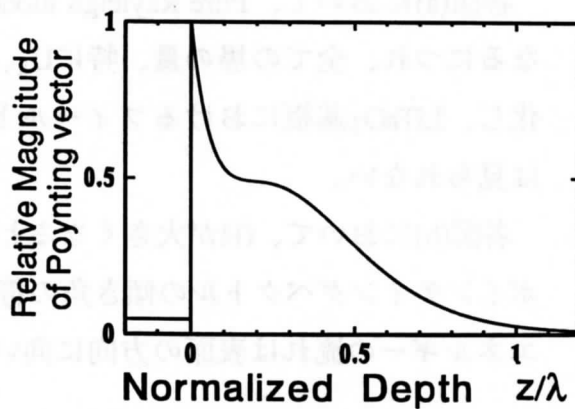
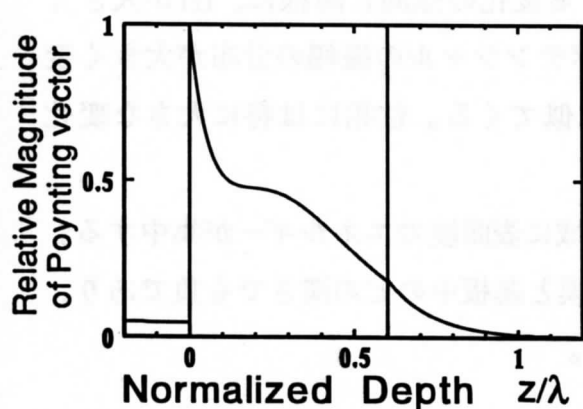


(b)ポインティングベクトル

図5-7 ZY-LiTaO<sub>3</sub>薄膜/ZY-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ )



(a)粒子変位およびポテンシャル



(b)ポインティングベクトル

図5-8 ZY-LiTaO<sub>3</sub>薄膜/ZY-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左: fH=2000Hz·m、右: ZY-LiTaO<sub>3</sub>基板(fH=0Hz·m))

エネルギーの流れは表面の方向に向いている。

### General Rayleigh mode

図5-9の左側に $fH=0\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合に相当するZ-cut X軸方向伝搬の $\text{LiNbO}_3$ 基板、同図右側に $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合のZ-cut X軸方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 薄膜/ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造におけるフィールド分布を示す。(a)は粒子変位およびポテンシャルの、(b)はポインティングベクトルの深さ方向の分布である。

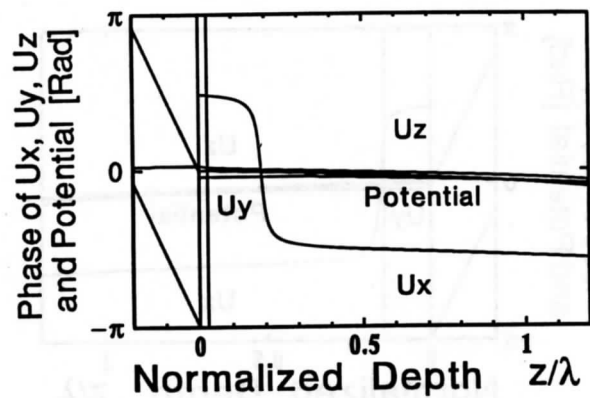
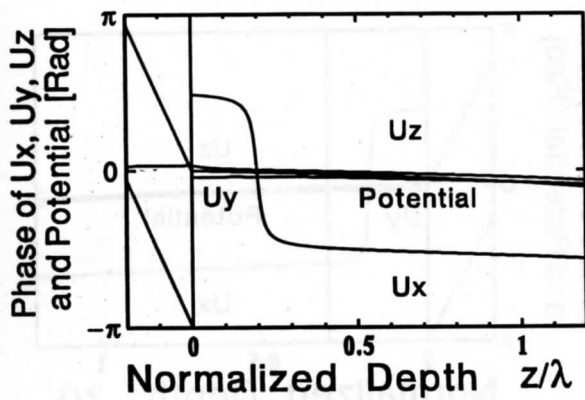
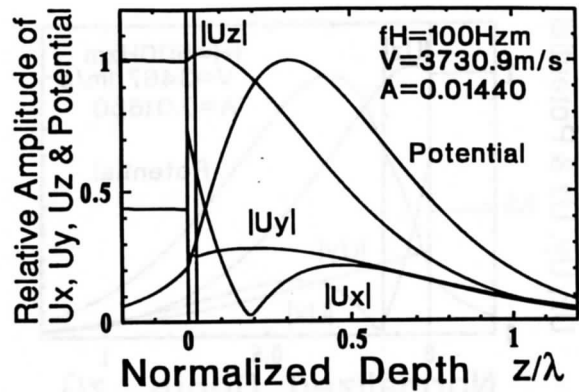
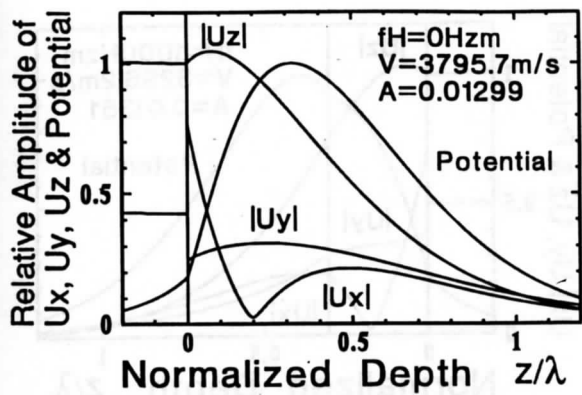
Pure Rayleigh modeと異なる点として、薄膜および基板中ではy軸方向の粒子変位 $U_y$ が存在し、 $U_y$ と $U_z$ の位相差はほとんどなく粒子はyz面内において直線的に振動する、 $U_x$ の振幅が極小となる深さにおいて $U_x$ の位相は $U_z$ と同相となっていることなどが挙げられる。

図5-10左側に $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-11左側に $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合のZ-cut X軸方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 薄膜/ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造、図5-11右側に $fH\rightarrow\infty\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合に相当するZ-cut X軸方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 基板におけるフィールド分布を示す。(a)は粒子変位およびポテンシャルの、(b)はポインティングベクトルの深さ方向の分布である。

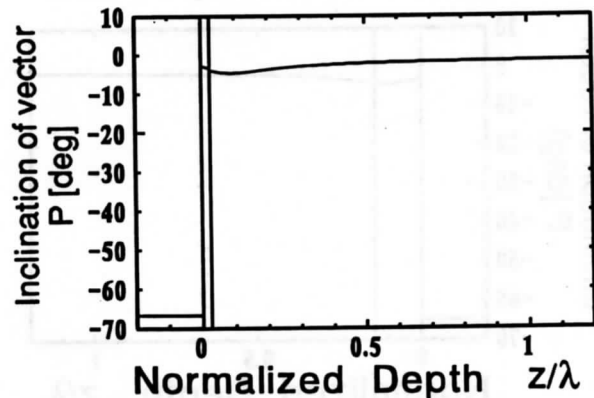
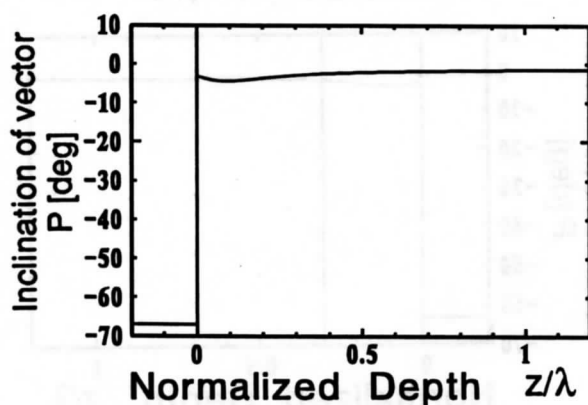
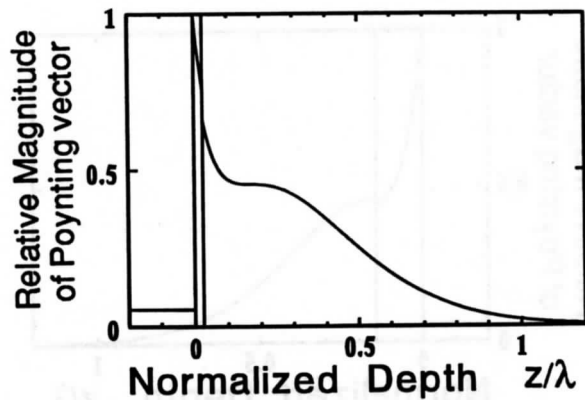
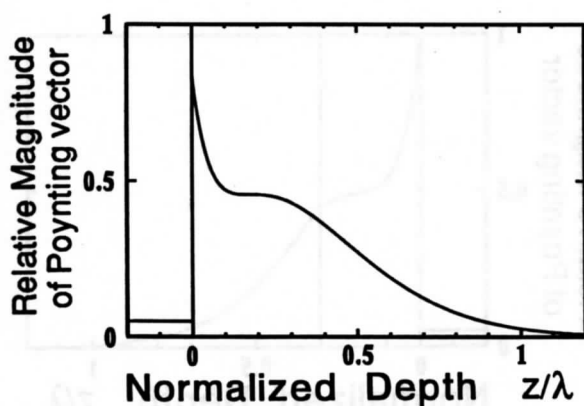
各図(a)において、Pure Rayleigh modeにおける変化の傾向と同様に、 $fH$ が大きくなるにつれ、全ての場の量、特に $U_x$ 、 $U_y$ とポテンシャルの振幅の分布が大きく変化し、 $\text{LiTaO}_3$ 基板におけるフィールド分布に似てくる。位相には特に大きな変化は見られない。

各図(b)において、 $fH$ が大きくなると薄膜領域に表面波のエネルギーが集中する。ポインティングベクトルの傾き角の符号は薄膜と基板中のどの深さでも負であり、エネルギーの流れは表面の方向に向いている。

以上、 $fH$ が大きくなると、 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜の弾性特性を反映してフィールド分布が変化する。その結果、漏洩レイリーモードの伝搬特性が $\text{LiTaO}_3$ 薄膜の弾性特性を反映して変化すると考えられる。



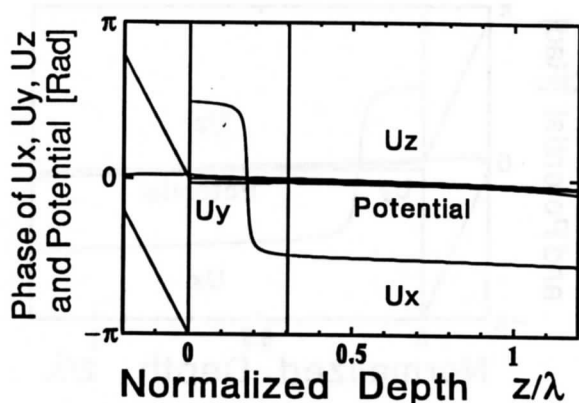
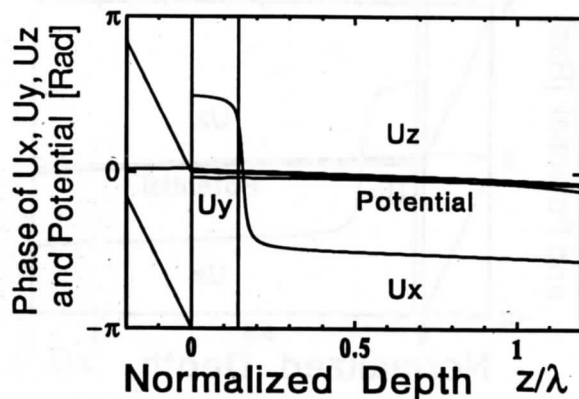
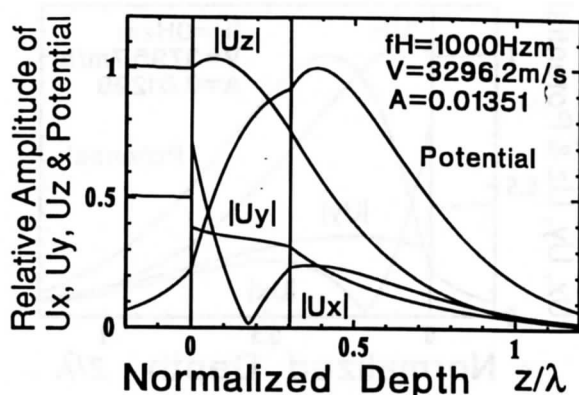
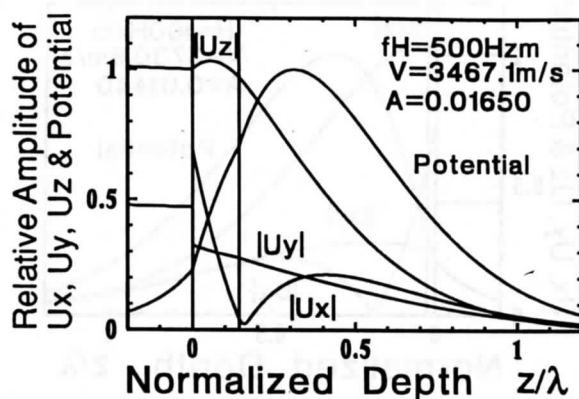
(a) 粒子変位およびポテンシャル



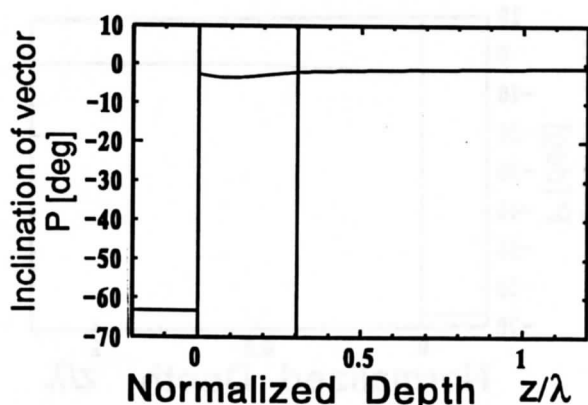
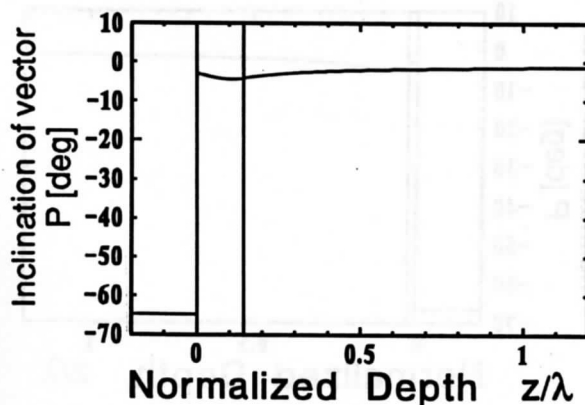
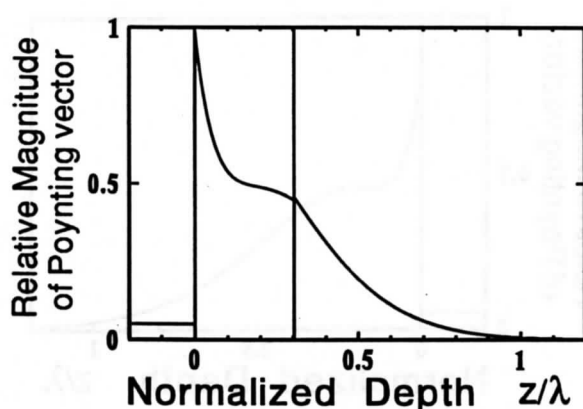
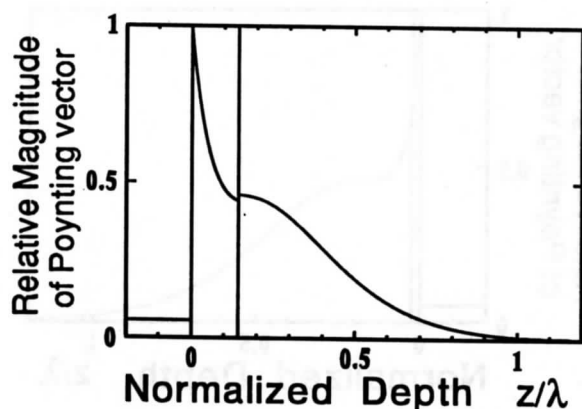
(b) ポインティングベクトル

図5-9 ZX-LiTaO<sub>3</sub>薄膜/ZX-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
 (a) 粒子変位およびポテンシャルと(b) ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
 (左:  $fH=0\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ )



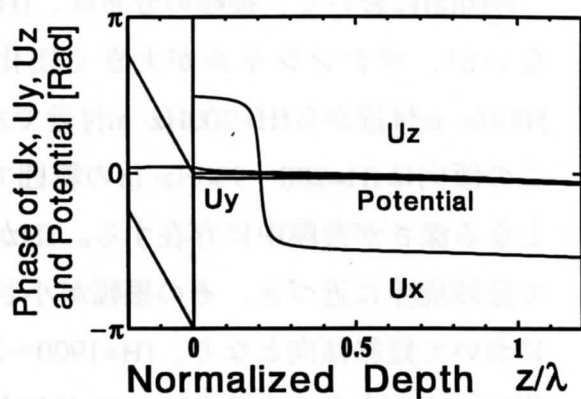
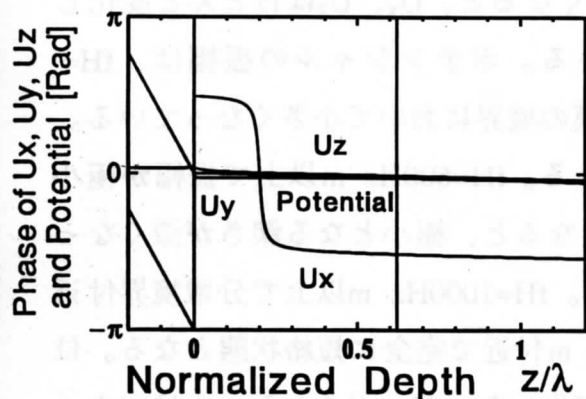
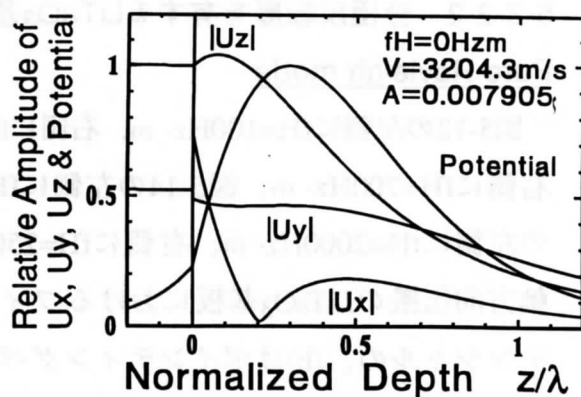
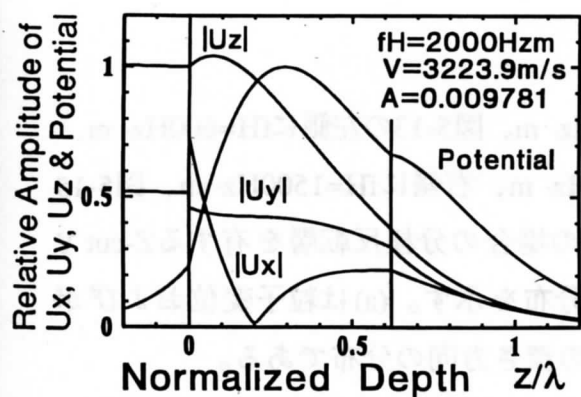


(a) 粒子変位およびポテンシャル

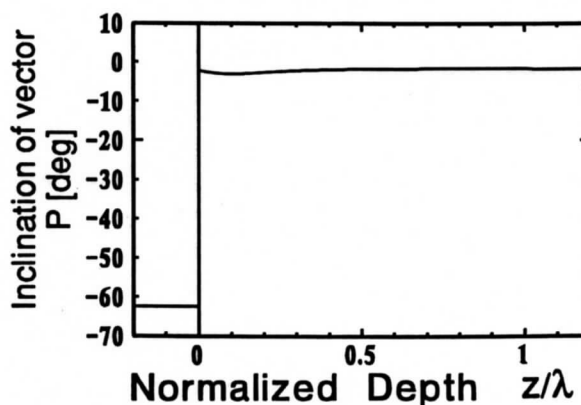
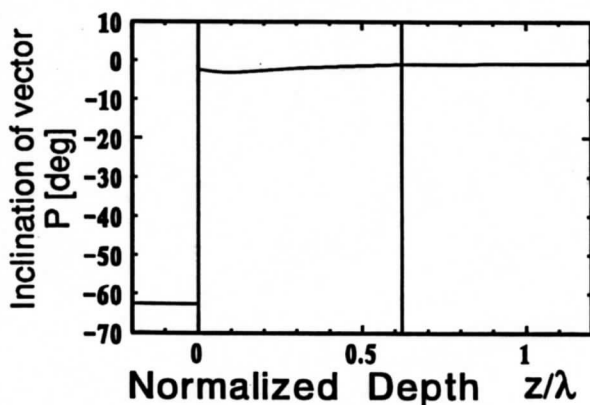
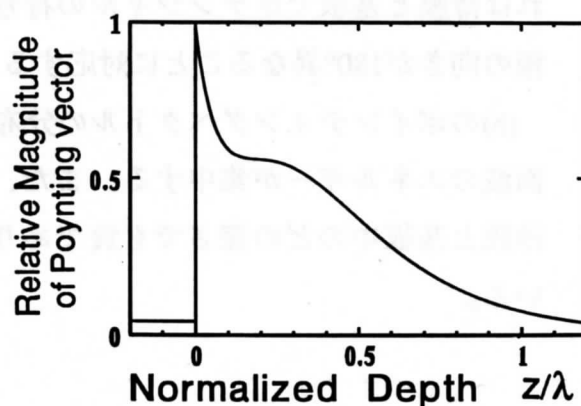
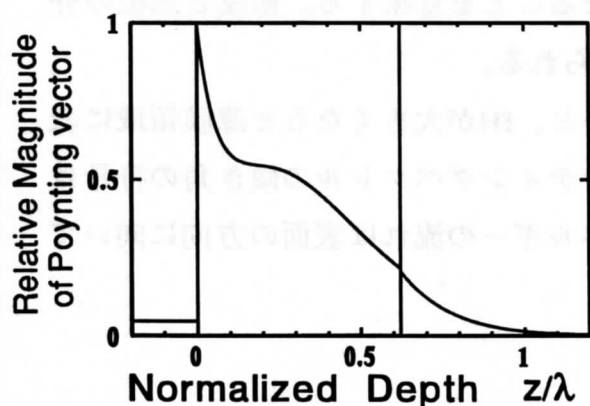


(b) ポインティングベクトル

図5-10 ZX-LiTaO<sub>3</sub>薄膜/ZX-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ )



(a)粒子変位およびポテンシャル



(b)ポインティングベクトル

図5-11 ZX-LiTaO<sub>3</sub>薄膜/ZX-LiNbO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右: ZX-LiTaO<sub>3</sub>基板( $fH=0\text{Hz}\cdot\text{m}$ ))



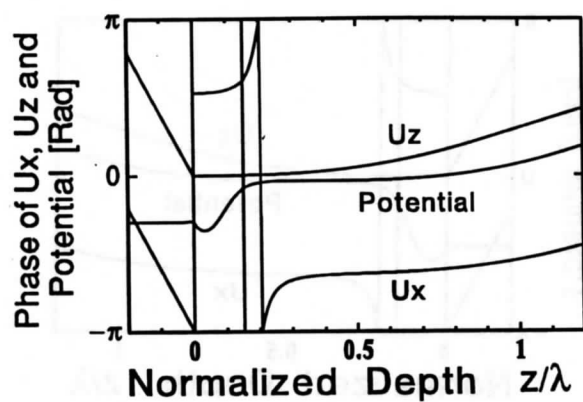
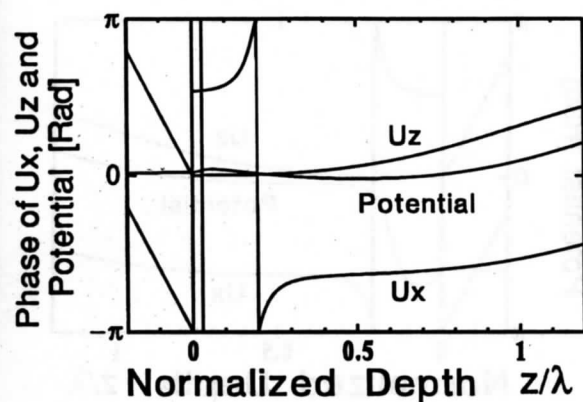
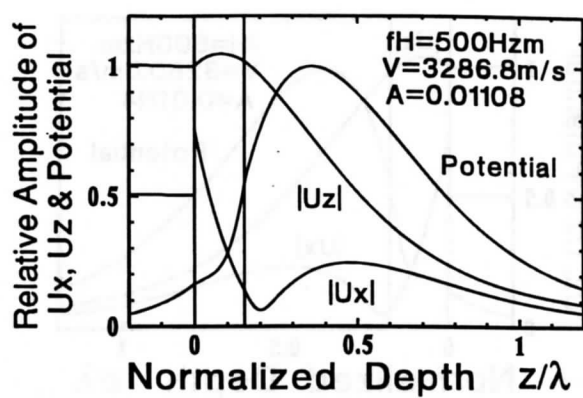
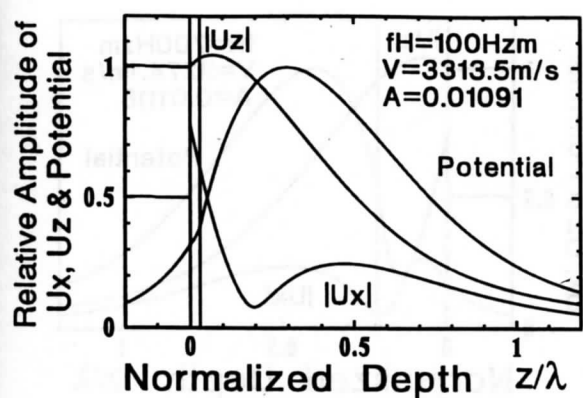
### 5-3-2-2 分極反転層を有するLiTaO<sub>3</sub>基板構造

#### Pure Rayleigh mode

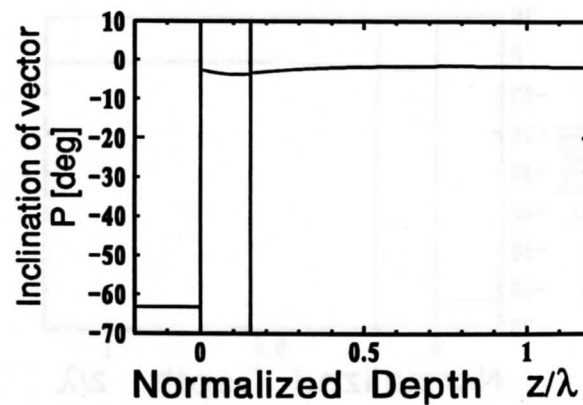
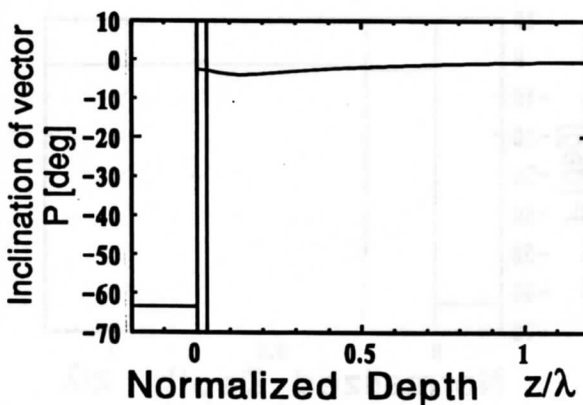
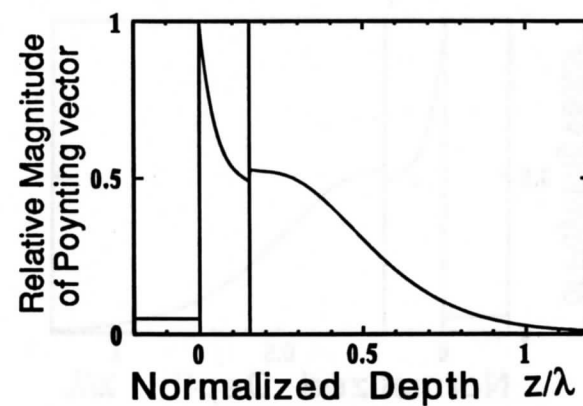
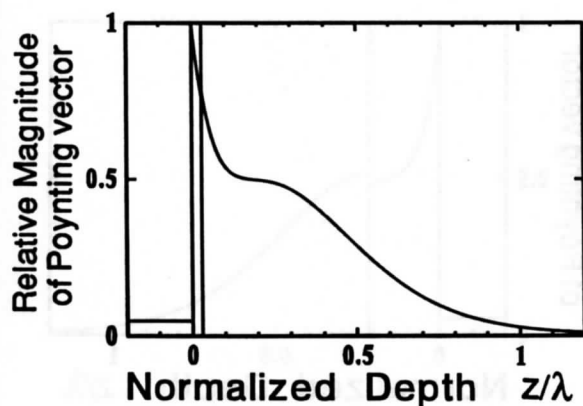
図5-12の左側に $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-13の左側に $fH=600\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=700\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-14の左側に $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=1500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-15の左側に $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=2500\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合の分極反転層を有するZ-cut Y軸方向伝搬のLiTaO<sub>3</sub>基板におけるフィールド分布を示す。(a)は粒子変位およびポテンシャルの、(b)はポインティングベクトルの深さ方向の分布である。

各図(a)において、振幅の分布は、 $fH$ が大きくなると、 $U_x$ 、 $U_z$ はほとんど変化しないが、ポテンシャルが大きく変化している。ポテンシャルの振幅は、 $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近から $fH=700\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近で水と薄膜の境界において小さくなっている。この傾向は $fH=200\sim 900\text{Hz}\cdot\text{m}$ の範囲で見られる。 $fH=600\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上で振幅が極小となる深さが薄膜中に存在する。 $fH$ が大きくなると、極小となる深さが深くなって分域境界に近づき、その振幅が小さくなる。 $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上で分域境界付近において短絡傾向となり、 $fH=1900\sim 2100\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近で完全に短絡状態となる。位相は、 $fH$ が大きくなると $U_x$ 、 $U_z$ はほとんど変化しないが、ポテンシャルは大きく変化し、 $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上では薄膜と基板でおよそ $180^\circ$ の位相差が見られる。これは薄膜と基板でポテンシャルの符号が異なることを意味する。薄膜と基板の分極の向きが $180^\circ$ 異なることに対応すると考えられる。

(b)のポインティングベクトルの分布を見ると、 $fH$ が大きくなると薄膜領域に表面波のエネルギーが集中する。また、ポインティングベクトルの傾き角の符号は薄膜と基板中のどの深さでも負であり、エネルギーの流れは表面の方向に向いている。

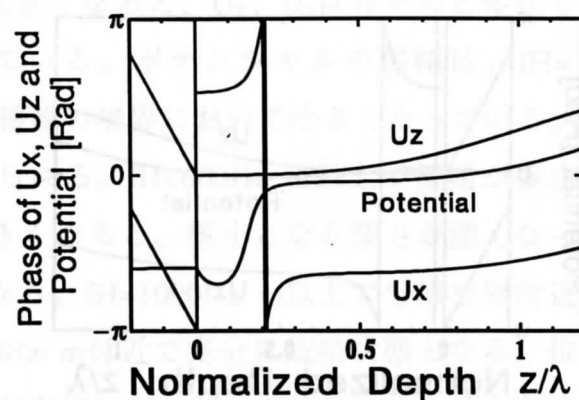
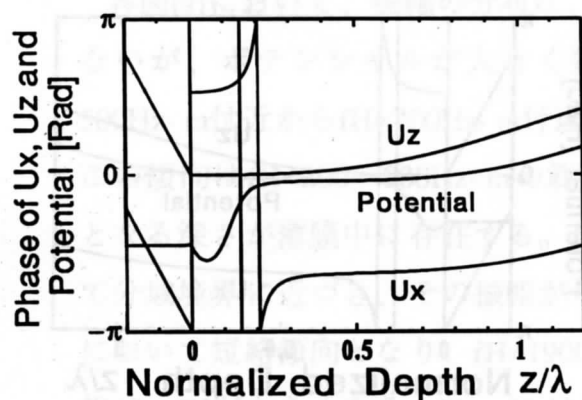
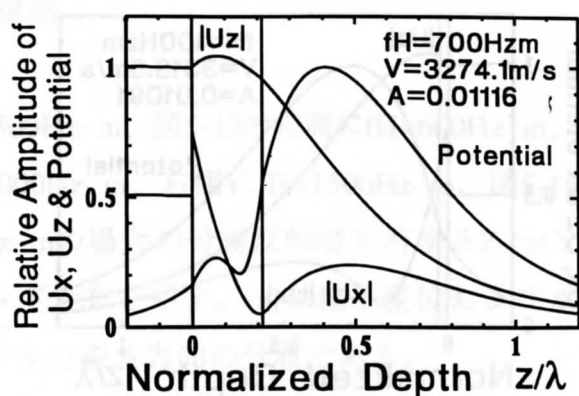
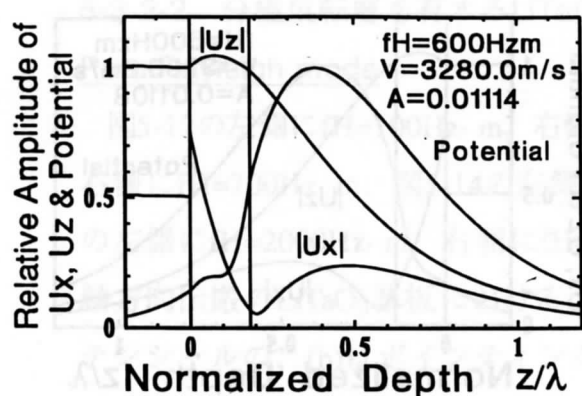


(a)粒子変位およびポテンシャル

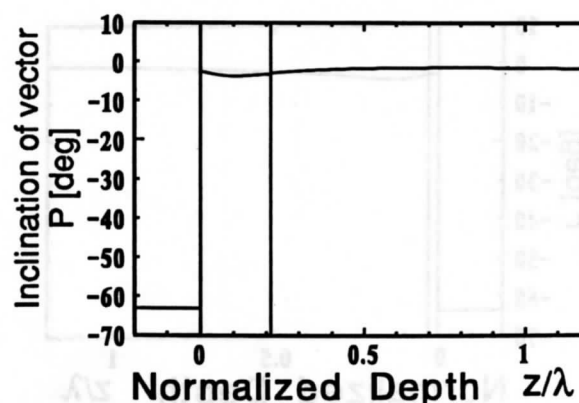
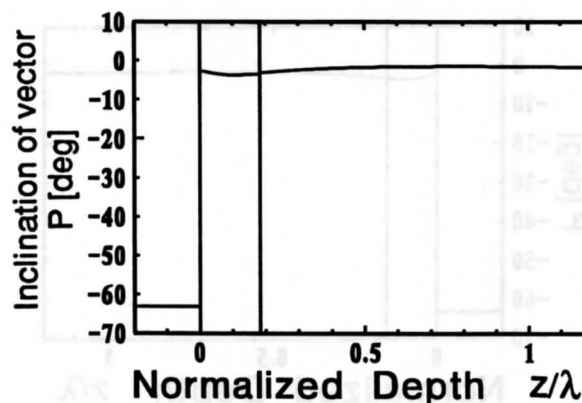
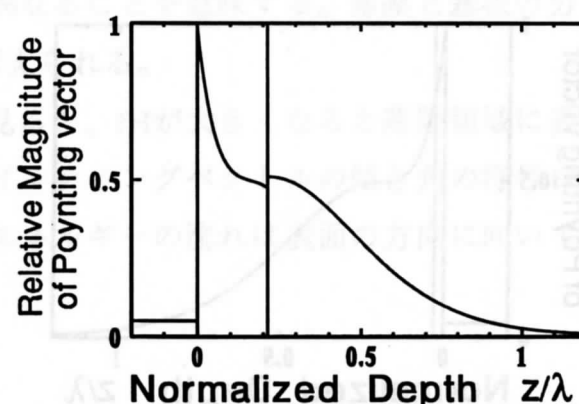
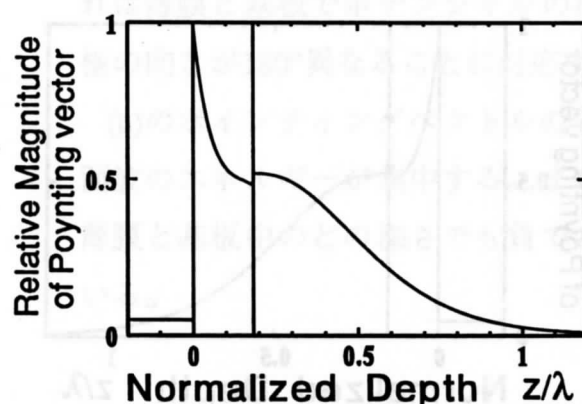


(b)ポインティングベクトル

図5-12 分極反転層を有するZY-LiTaC<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ )

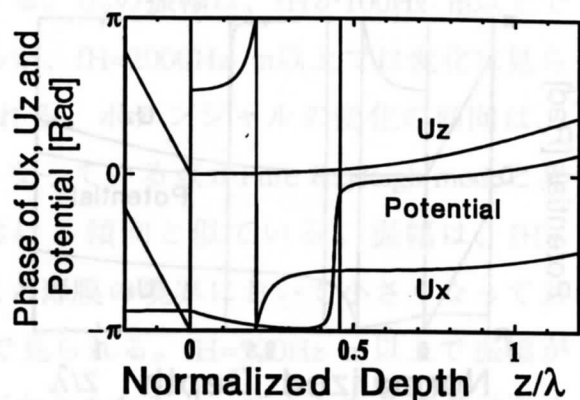
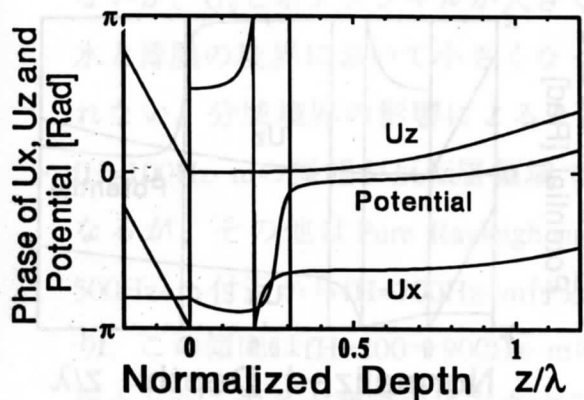
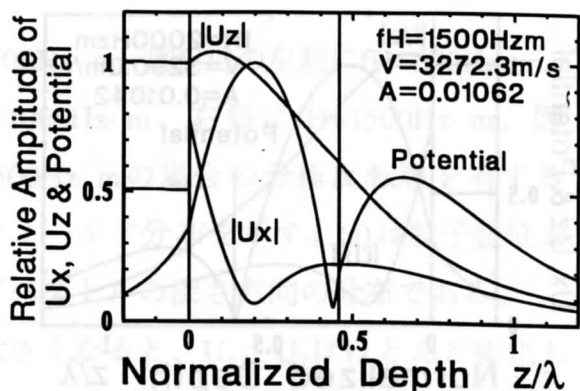
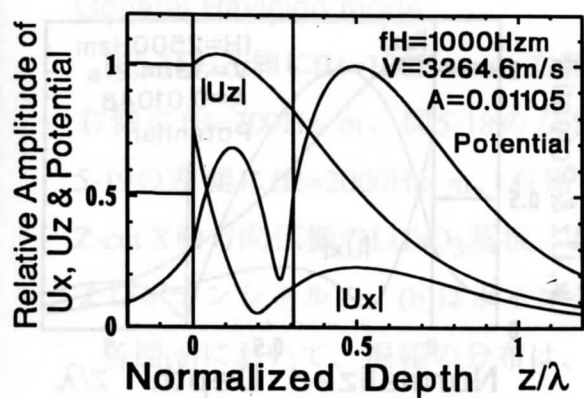


(a)粒子変位およびポテンシャル

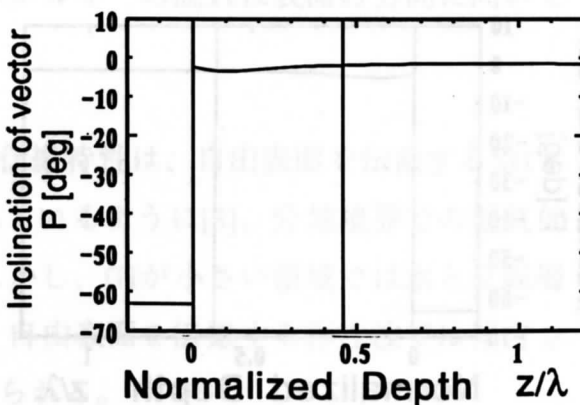
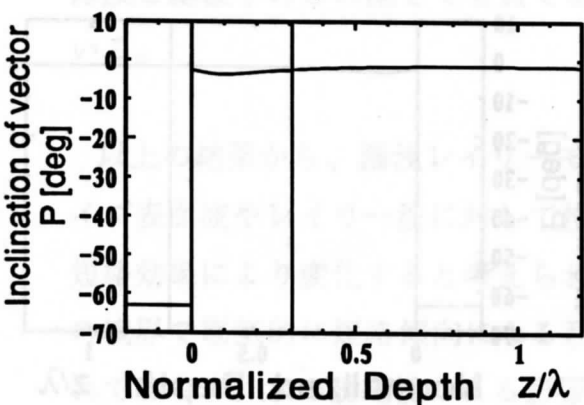
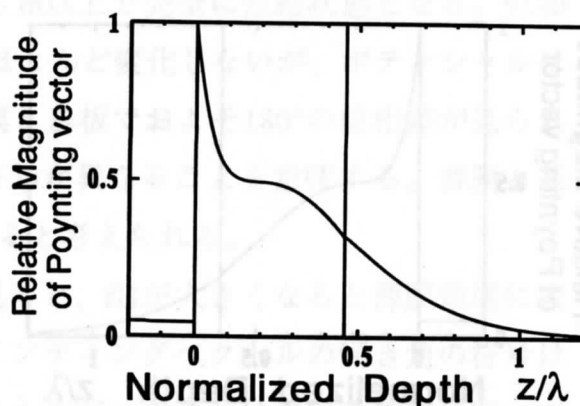
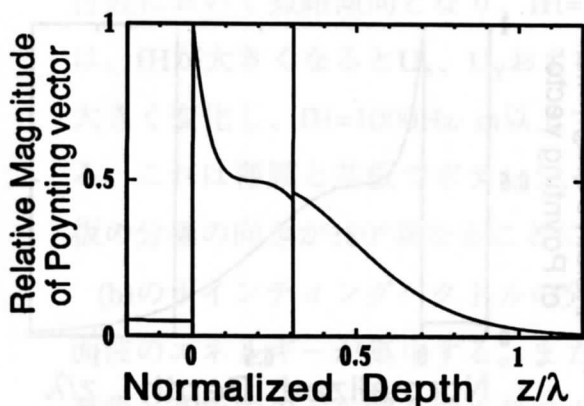


(b)ポインティングベクトル

図5-13 分極反転層を有するZY-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=600\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=700\text{Hz}\cdot\text{m}$ )

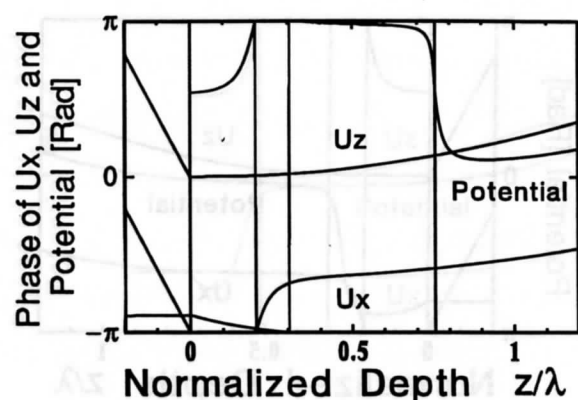
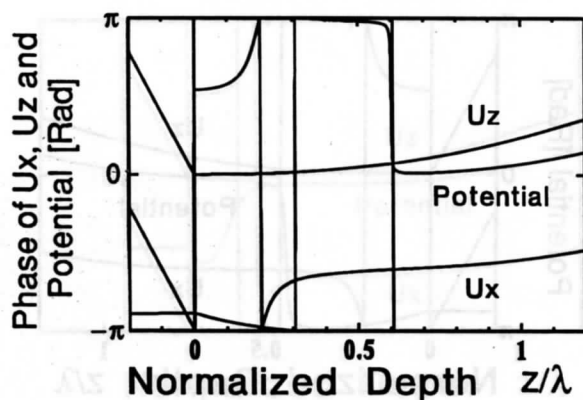
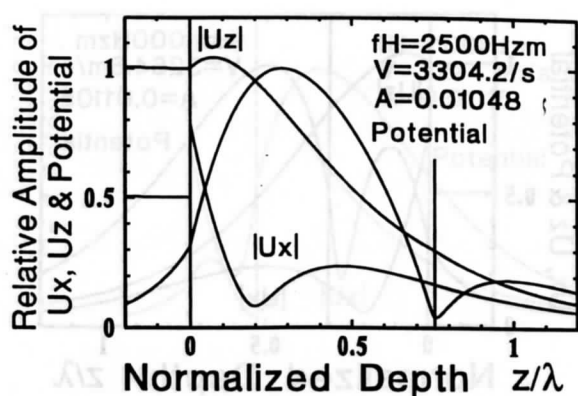
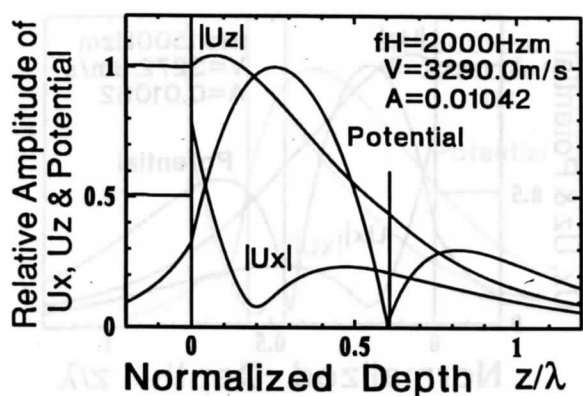


(a)粒子変位およびポテンシャル

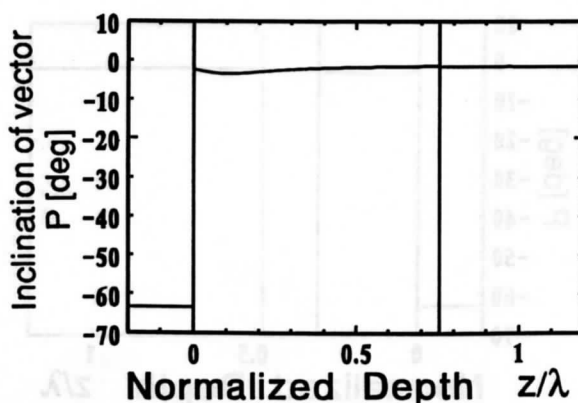
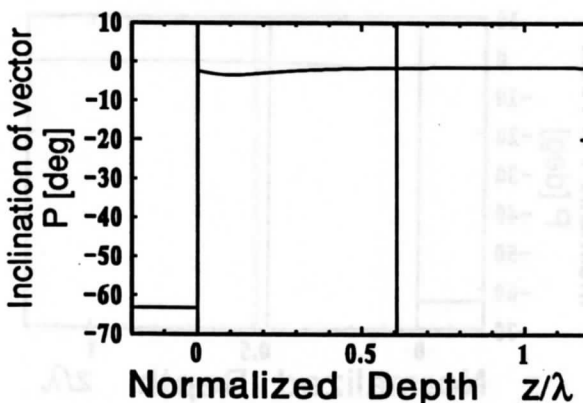
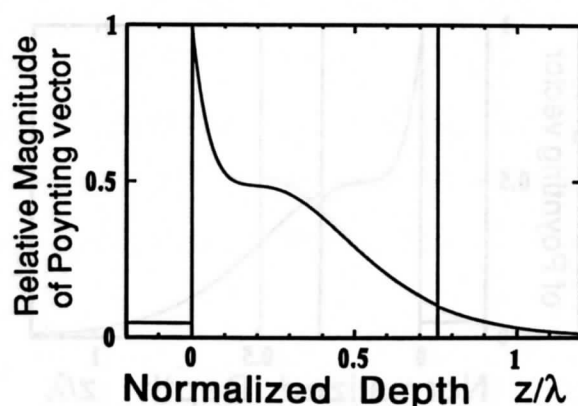
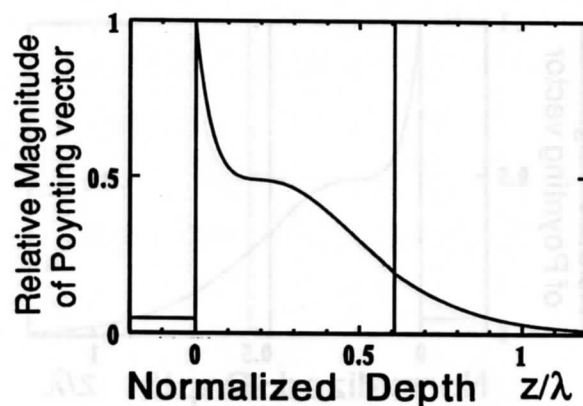


(b)ポインティングベクトル

図5-14 分極反転層を有するZY-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ , 右:  $fH=1500\text{Hz}\cdot\text{m}$ )



(a)粒子変位およびポテンシャル



(b)ポインティングベクトル

図5-15 分極反転層を有するZY-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ , 右:  $fH=2500\text{Hz}\cdot\text{m}$ )

## General Rayleigh mode

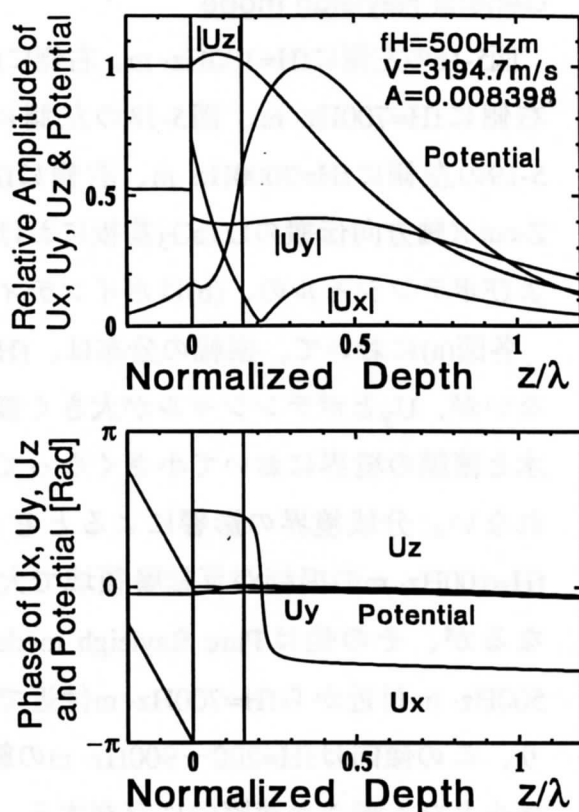
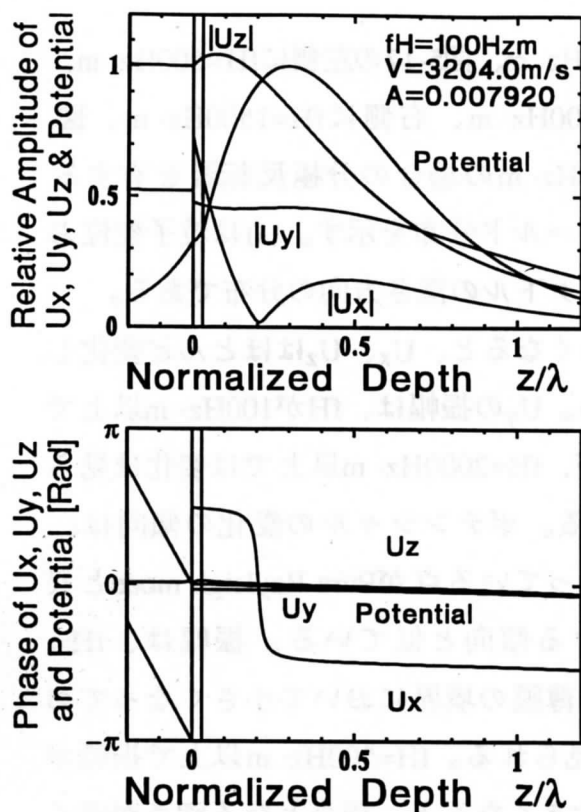
図5-16の左側に $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-17の左側に $fH=600\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=700\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-18の左側に $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=1500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、図5-19の左側に $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右側に $fH=2500\text{Hz}\cdot\text{m}$ の場合の分極反転層を有するZ-cut X軸方向伝搬の $\text{LiTaO}_3$ 基板におけるフィールド分布を示す。(a)は粒子変位およびポテンシャルの、(b)はポインティングベクトルの深さ方向の分布である。

各図(a)において、振幅の分布は、 $fH$ が大きくなると、 $U_x$ 、 $U_z$ はほとんど変化しないが、 $U_y$ とポテンシャルが大きく変化する。 $U_y$ の振幅は、 $fH$ が $100\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上で水と薄膜の境界において小さくなっているが、 $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上では変化は見られない。分域境界の影響によると考えられる。ポテンシャルの変化の傾向は、 $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ の振幅が反転層領域で大きくなっている点がPure Rayleigh modeと異なるが、その他はPure Rayleigh modeにおける傾向と似ている。振幅は、 $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近から $fH=700\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近では水と薄膜の境界において小さくなっており、この傾向は $fH=200\sim 900\text{Hz}\cdot\text{m}$ の範囲で見られる。 $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上で振幅が極小となる深さが薄膜中に存在する。 $fH$ が大きくなると、極小となる深さが深くなって分域境界に近づき、その振幅が小さくなる。 $fH=700\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上で分域境界付近において短絡傾向となり、 $fH=1500\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上で完全に短絡状態となる。位相は、 $fH$ が大きくなると $U_x$ 、 $U_y$ および $U_z$ はほとんど変化しないが、ポテンシャルは大きく変化する、 $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 以上では薄膜と基板でおよそ $180^\circ$ の位相差が見られる。これは薄膜と基板でポテンシャルの符号が異なることを意味する。薄膜と基板の分極の向きが $180^\circ$ 異なることに対応すると考えられる。

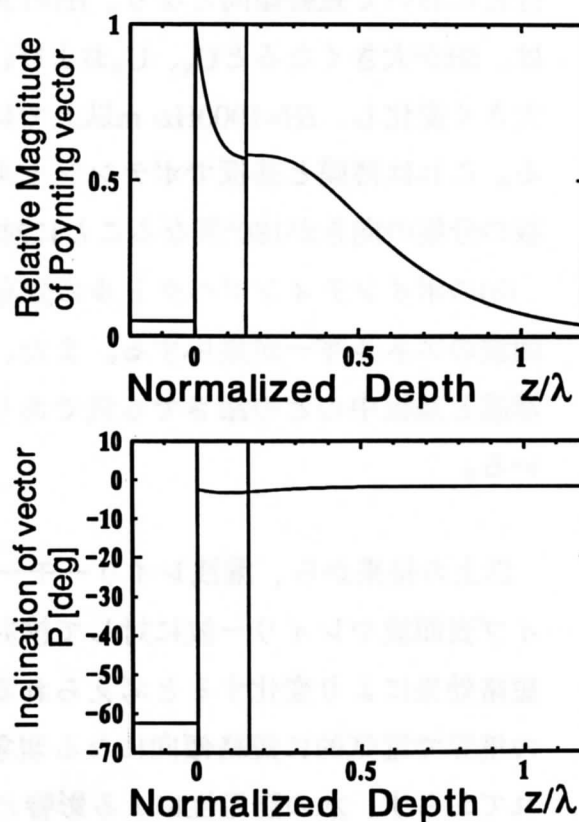
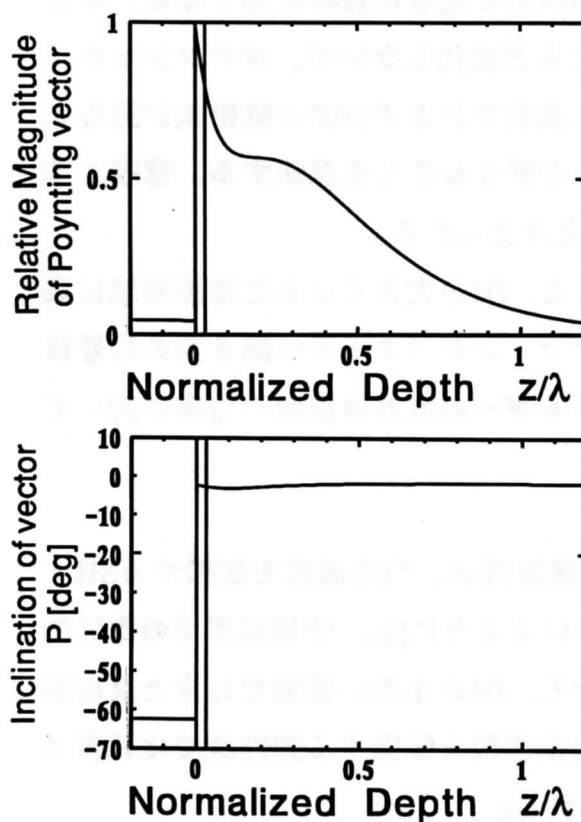
(b)のポインティングベクトルの分布を見ると、 $fH$ が大きくなると薄膜領域に表面波のエネルギーが集中する。また、ポインティングベクトルの傾き角の符号は薄膜と基板中のどの深さでも負であり、エネルギーの流れは表面の方向に向いている。

以上の結果から、漏洩レイリーモードの伝搬特性は、自由表面を伝搬するSHタイプ表面波やレイリー波に対して検討されているように[3]、分域境界での電氣的短絡効果により変化すると考えられる。しかし、 $fH$ が小さい領域では水と反転層の境界で電氣的に短絡傾向になる現象は、自由表面を伝搬する弾性波では報告されておらず、水の誘電性による影響と考えられる。



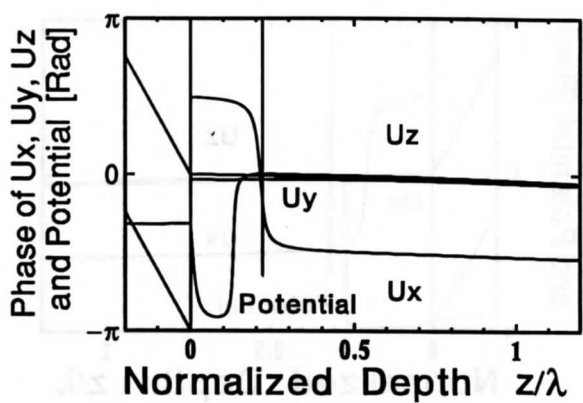
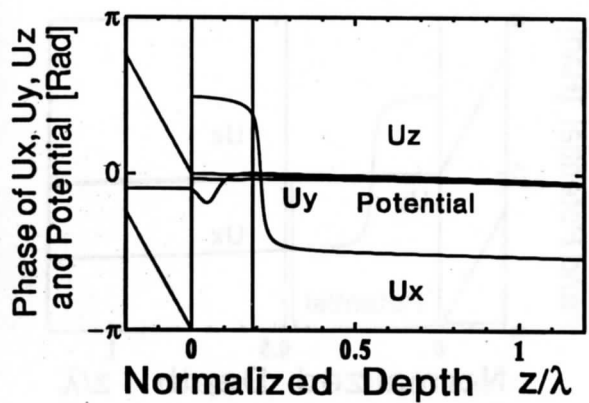
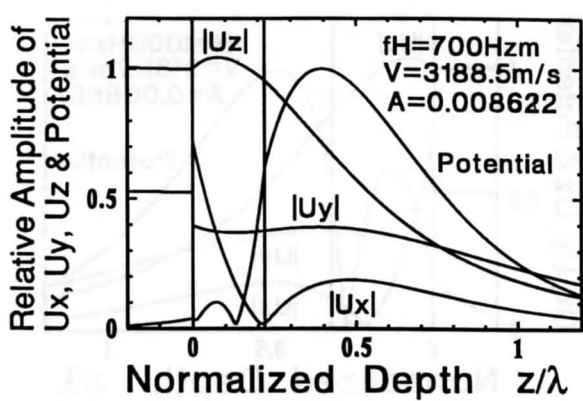
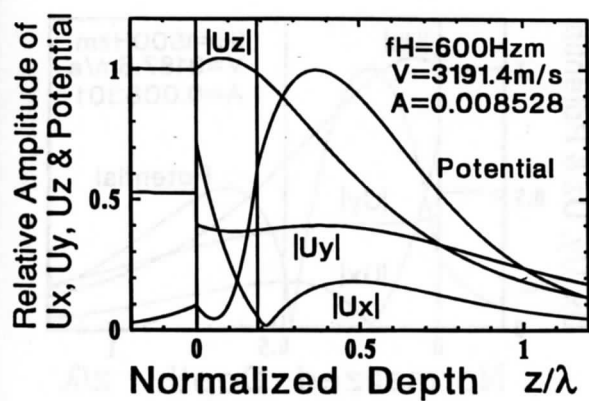


(a)粒子変位およびポテンシャル

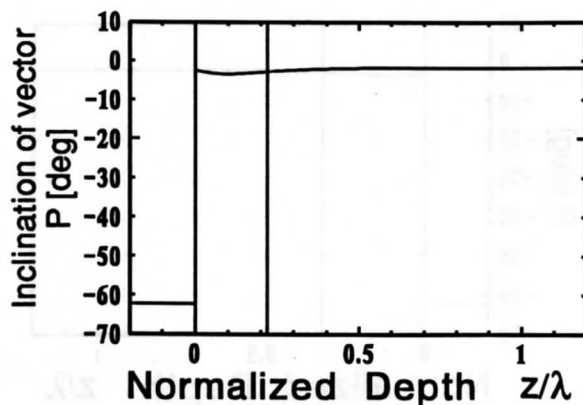
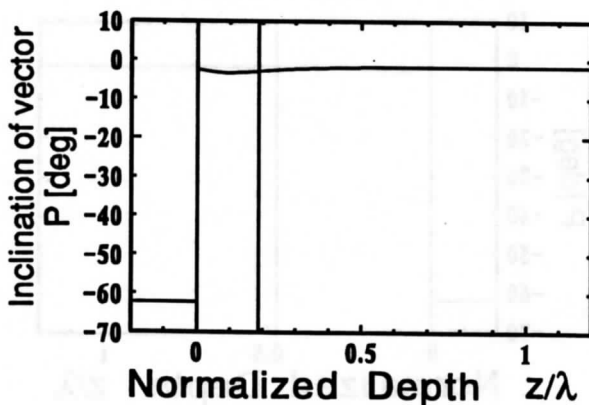
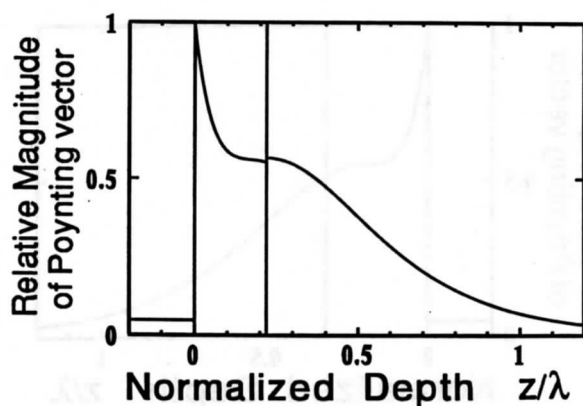
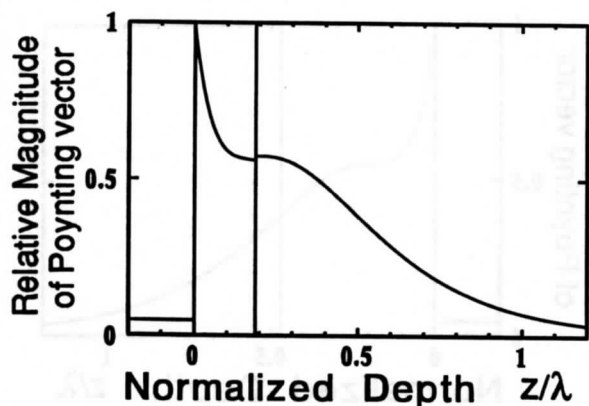


(b)ポインティングベクトル

図5-16 分極反転層を有するZX-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
 (a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
 (左:  $fH=100\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=500\text{Hz}\cdot\text{m}$ )



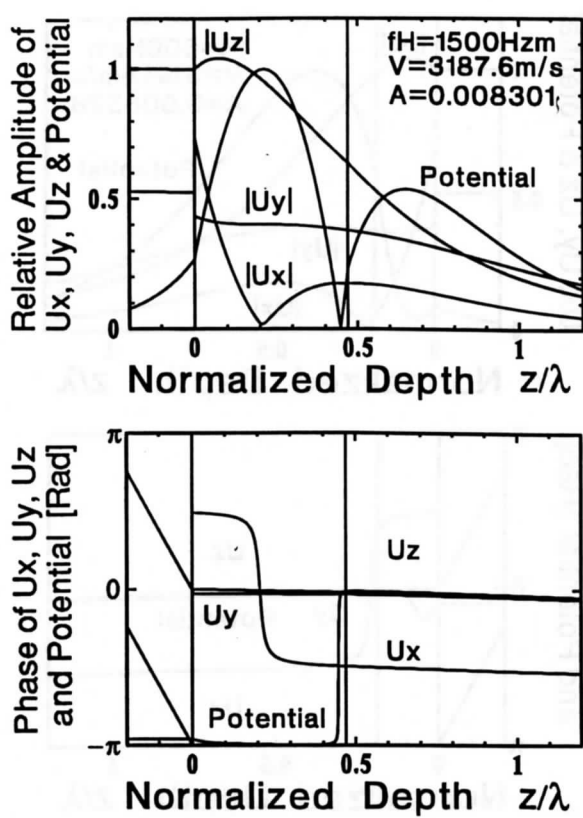
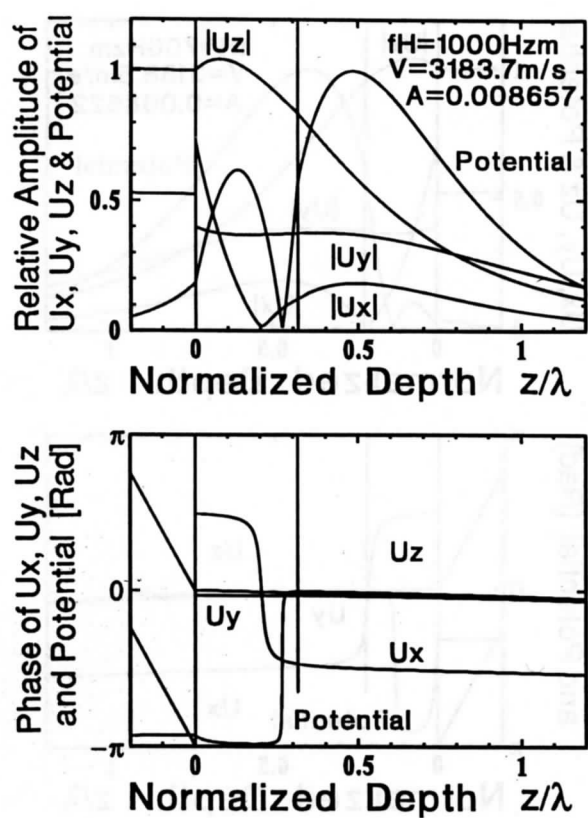
(a) 粒子変位およびポテンシャル



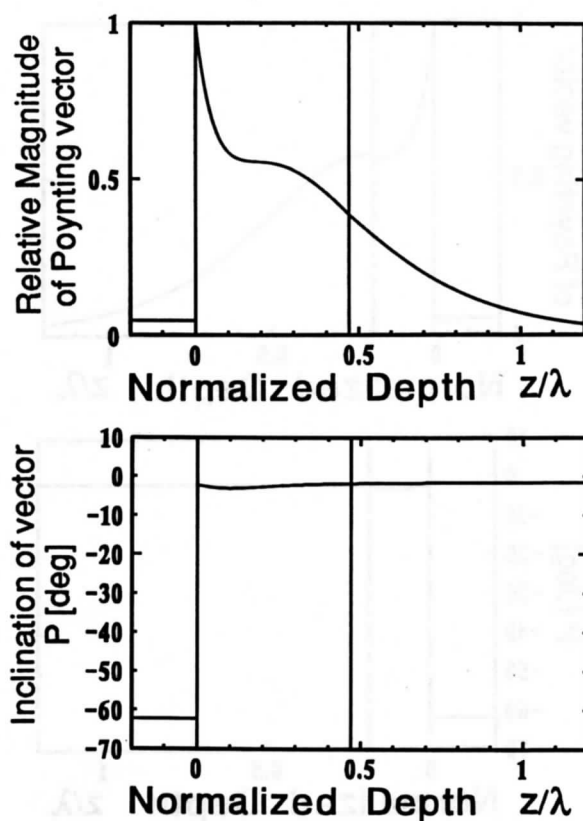
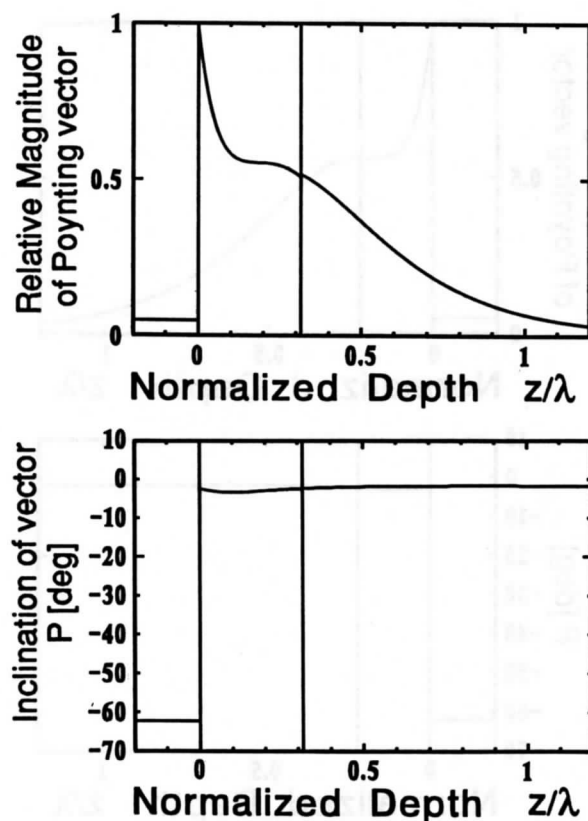
(b) ポインティングベクトル

図5-17 分極反転層を有するZX-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
 (a) 粒子変位およびポテンシャルと(b) ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
 (左:  $fH=600\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=700\text{Hz}\cdot\text{m}$ )



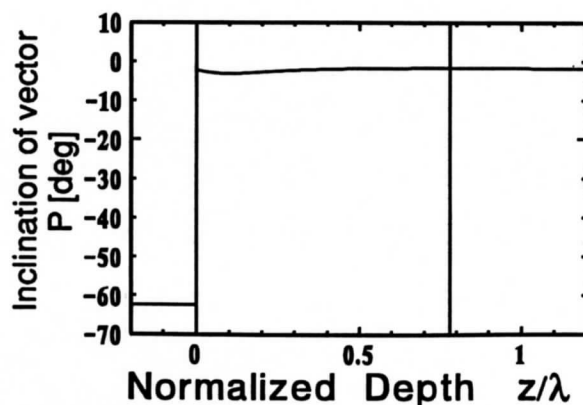
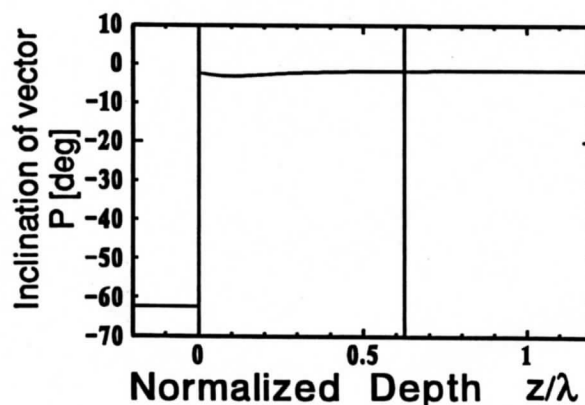
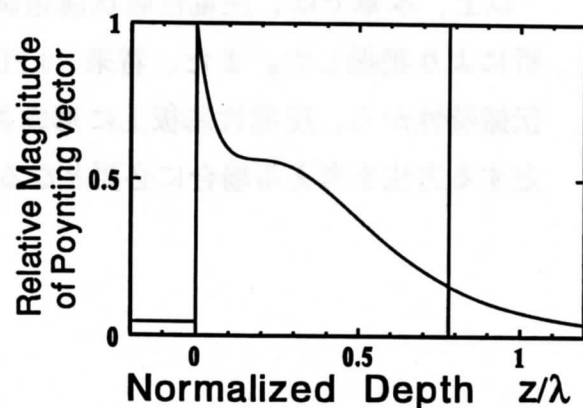
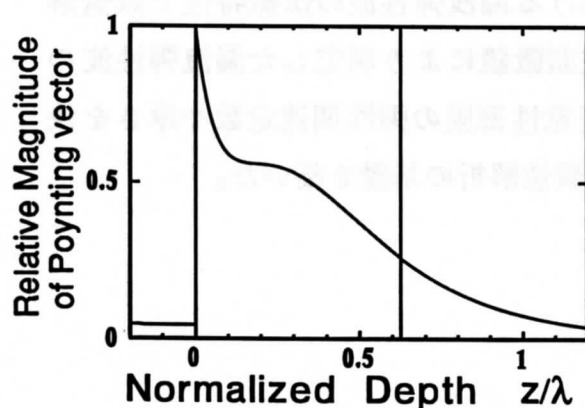
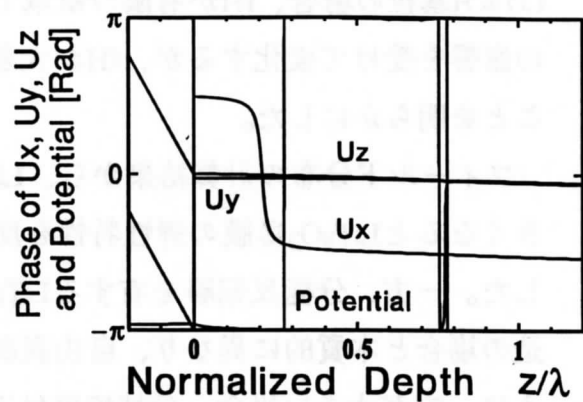
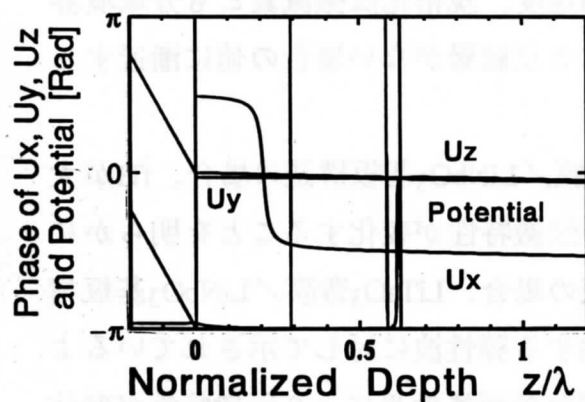
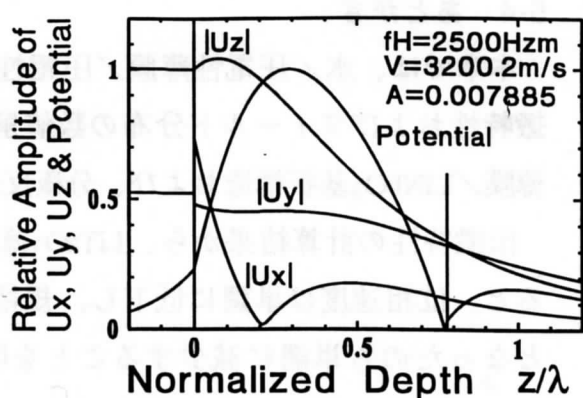
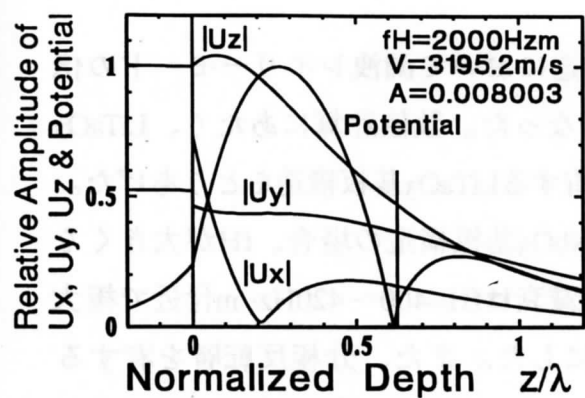


(a) 粒子変位およびポテンシャル



(b) ポインティングベクトル

図5-18 分極反転層を有するZX-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
 (a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
 (左:  $fH=1000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=1500\text{Hz}\cdot\text{m}$ )



(b) ポインティングベクトル

図5-19 分極反転層を有するZX-LiTaO<sub>3</sub>基板構造における漏洩レイリーモードの  
(a)粒子変位およびポテンシャルと(b)ポインティングベクトルの深さ方向の分布  
(左:  $fH=2000\text{Hz}\cdot\text{m}$ 、右:  $fH=2500\text{Hz}\cdot\text{m}$ )

#### 5-4 あとがき

本章では、水／圧電性薄膜／圧電性基板構造において漏洩レイリーモードの伝搬特性およびフィールド分布の数値解析を行なった。数値計算にあたり、 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜／ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造および、分極反転層を有する $\text{LiTaO}_3$ 基板構造をとりあげた。

伝搬特性の計算結果から、 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜／ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造の場合、 $fH$ が大きくなると、位相速度は単調に低下し、規格化伝搬減衰は $fH=400\sim 420\text{Hz}\cdot\text{m}$ 付近で極大となったのち単調に減少することを明らかにした。また、分極反転層を有する $\text{LiTaO}_3$ 基板の場合、 $fH$ が有限の領域では位相速度、規格化伝搬減衰とも分域境界の影響を受けて変化するが、 $fH$ が大きくなると反転層がない場合の値に漸近することを明らかにした。

フィールド分布の計算結果から、 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜／ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造の場合、 $fH$ が大きくなると $\text{LiTaO}_3$ 薄膜の弾性特性を反映して伝搬特性が変化することを明らかにした。一方、分極反転層を有する $\text{LiTaO}_3$ 基板の場合、 $\text{LiTaO}_3$ 薄膜／ $\text{LiNbO}_3$ 基板構造の場合と本質的に異なり、自由表面を伝搬する弾性波に対して示されているように、 $fH$ が大きい場合、分域境界付近での電氣的短絡効果により伝搬特性が変化することを明らかにした。

以上、本章では、圧電性層状構造試料における漏洩弾性波の伝搬特性を数値解析により把握した。また、将来、LFB超音波顕微鏡により測定した漏洩弾性波の伝搬特性から、圧電性基板上に形成された圧電性薄膜の弾性関連定数や厚さを決定する方法を考える場合に必要となる理論・数値解析の基礎を築いた。

## 5 章の参考文献

- [1] F. S. Hickernell, K. D. Ruehle, S. J. Joseph, G. M. Reese, and J. F. Weller, "The surface acoustic wave properties of proton exchanged YZ lithium niobate", IEEE Ultrason. Symp. Proc. pp. 237-240 (1985).
- [2] G. W. Farnell and E. L. Adler, "Elastic wave propagation in thin layers", (Physical Acoustics IX, Chapter 2) edited by W. P. Mason and R. N. Thurston (Academic Press, New York, London, 1972), pp. 35-127.
- [3] 艾莉、中村、清水、「分極反転層を有するLiTaO<sub>3</sub>回転Y板における擬似弾性表面波の伝搬特性」、電子情報通信学会、信学技報、US89-44 (1989).
- [4] 石川利広、「直線集束ビーム超音波顕微鏡による薄膜材料の音響特性測定法に関する研究」、東北大学修士学位論文 (平成元年2月).
- [5] J. Kushibiki, T. Ishikawa, and N. Chubachi, "Cut-off characteristics of leaky Sezawa and pseudo-Sezawa wave modes for thin-film characterization", Appl. Phys. Lett. 57, pp. 1967-1969 (1990).
- [6] Erwin M. Biebl, Peter H. Russer, Kimon Anemogiannis, "Saw propagation on proton-exchanged lithiumniobate", IEEE Ultrason. Symp. Proc. pp. 281- 284 (1989).
- [7] S. Kakio, J. Matsuoka, and Y. Nakagawa, "Surface acoustic wave properties on proton-exchanged 128°-rotated Y-cut LiNbO<sub>3</sub>", Jpn. J. Appl. Phys. 32, pp.2359-2361 (1993).
- [8] M. Hirabayashi, T. Yamasaki, and Y. Komatsu, "Measurement of velocity of surface acoustic waves on proton-exchanged lithium tantalate using comb filters", Jpn. J. Appl. Phys. 32, pp. 2355-2358 (1993).
- [9] V. Hinkov and E. Ise, J. Phys., D:Appl. Phys. 18, (1985) L31.
- [10] V. Hinkov, "Proton exchanged waveguides for surface acoustic waves on LiNbO<sub>3</sub>", J. Appl. Phys. 62, pp. 3573-3578 (1987).
- [11] P. J. Burnett, G. A. Briggs, S. M. Al-Shunkri, J. F. Duffy, and R. M. De La Rue, "Acoustic properties of proton-exchanged LiNbO<sub>3</sub> studied using the acoustic microscopy V(z) technique", J. Appl. Phys. 60, pp. 2517-2522 (1986).

- [12] K. Hano, N. Chubachi, and T. Sannomiya, "Changes of surface-acoustic wave velocity on Z-cut LiTaO<sub>3</sub> substrate by proton exchange and post-exchange annealing", Electron. Lett. 28, pp. 2306-2307 (1992).
- [13] J. J. Campbell and W. R. Jones, "Propagation of surface waves at the boundary between a piezoelectric crystal and fluid medium", IEEE Trans. Sonics & Ultrason. SU-17, pp. 71-76 (1970).
- [14] B. A. Auld, ACOUSTIC FIELDS AND WAVES IN SOLIDS, (John Wiley & Sons, Inc. New York, 1973), Vol. I.
- [15] A. W. Warner, M. Onoe, and G. A. Coquin, "Determination of elastic and piezoelectric constants for crystals in class(3m)", J. Acoust. Soc. Am. 42, pp. 1223-1231 (1967).
- [16] W. Kroebel and K. H. Mahrt, "Recent results of absolute sound velocity measurements in pure water and sea water at atmospheric pressure", Acustica, 35, pp. 154-164 (1976).
- [17] G. S. Kell, "Density, thermal expansivity, and compressibility of liquid water from 0° to 150°C: correlation and tables for atmospheric pressure and saturation reviewed and expressed on 1968 temperature scale", J. Chem. & Engineer. Data 20, pp. 97-105 (1975).

## 5章の付録

$\nabla_s$ 、 $\nabla \cdot$  の定義[14]

$$\nabla_s = \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial x} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\partial}{\partial y} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\partial}{\partial z} \\ 0 & \frac{\partial}{\partial z} & \frac{\partial}{\partial y} \\ \frac{\partial}{\partial z} & 0 & \frac{\partial}{\partial x} \\ \frac{\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial x} & 0 \end{bmatrix} \quad \nabla \cdot = \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial x} & 0 & 0 & 0 & \frac{\partial}{\partial z} & \frac{\partial}{\partial y} \\ 0 & \frac{\partial}{\partial y} & 0 & \frac{\partial}{\partial z} & 0 & \frac{\partial}{\partial x} \\ 0 & 0 & \frac{\partial}{\partial z} & \frac{\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial x} & 0 \end{bmatrix}$$

理論計算に用いた材料定数

三方晶3m

弾性スティフネス定数

$$[c_{IJ}] = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & -c_{14} & 0 & 0 \\ c_{13} & c_{13} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ c_{14} & -c_{14} & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & c_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{14} & c_{66} \end{bmatrix}, \quad c_{66} = \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12})$$

圧電定数

$$[e_{IJ}] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & -e_{22} \\ -e_{22} & e_{22} & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

比誘電率

$$[\epsilon] = \begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$$

# LiNbO<sub>3</sub>[15]

## 弾性ステイフネス定数

$$[c_{IJ}] = \begin{bmatrix} 2.03 & 0.53 & 0.75 & 0.09 & 0 & 0 \\ 0.53 & 2.03 & 0.75 & -0.09 & 0 & 0 \\ 0.75 & 0.75 & 2.45 & 0 & 0 & 0 \\ 0.09 & -0.09 & 0 & 0.60 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0.60 & 0.09 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0.09 & 0.75 \end{bmatrix} \times 10^{11} \text{ N/m}^2$$

## 圧電定数

$$[e_{IJ}] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 3.7 & -2.5 \\ -2.5 & 2.5 & 0 & 3.7 & 0 & 0 \\ 0.2 & 0.2 & 1.3 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \text{ C/m}^2$$

## 比誘電率

$$[\epsilon] = \begin{bmatrix} 43.9342 & 0 & 0 \\ 0 & 43.9342 & 0 \\ 0 & 0 & 29.0259 \end{bmatrix}$$

## 密度

$$\rho = 4700 \text{ kg/m}^3$$

# LiTaO<sub>3</sub>[15]

## 弾性ステイフネス定数

$$[c_{IJ}] = \begin{bmatrix} 2.33 & 0.47 & 0.80 & -0.11 & 0 & 0 \\ 0.47 & 2.33 & 0.80 & 0.11 & 0 & 0 \\ 0.80 & 0.80 & 2.75 & 0 & 0 & 0 \\ -0.11 & 0.11 & 0 & 0.94 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0.94 & -0.11 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -0.11 & 0.93 \end{bmatrix} \times 10^{11} \text{ N/m}^2$$

## 圧電定数

$$[e_{IJ}] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 2.6 & -1.6 \\ -1.6 & 1.6 & 0 & 2.6 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1.9 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \text{ C/m}^2$$

## 比誘電率

$$[\epsilon] = \begin{bmatrix} 40.9977 & 0 & 0 \\ 0 & 40.9977 & 0 \\ 0 & 0 & 43.0306 \end{bmatrix}$$

## 密度

$$\rho = 7450 \text{ kg/m}^3$$

水

縦波速度[16]

$$V_w = 1483.0 \text{ m/s}$$

密度[17]

$$\rho = 998.2 \text{ kg/m}^3$$

比誘電率

$$\epsilon_r = 77.42$$

真空の誘電率

$$\epsilon_0 = 8.85416 \times 10^{-12} \text{ F/m}$$



## 6. 直線集束ビーム超音波顕微鏡によるLiTaO<sub>3</sub>プロトン交換層の評価

### 6-1 まえがき

強誘電体であるLiTaO<sub>3</sub>単結晶のもつ電気光学効果、非線形光学効果などの性質を利用した光導波型デバイスの研究・開発が進められている。たとえば、導波路内における非線形光学効果を利用した二次高調波発生(Second-Harmonic Generation : SHG)デバイスは、青色光源をコンパクトに実現でき、光メモリーやレーザープリンタへの応用が期待されている[1]。そのデバイスにおいて、光導波路を基板表面に形成するための一方法としてプロトン交換法が使われている[2]。プロトン交換光導波路の光学的・物理的特性は作製プロセスの条件に依存し、従来、二次イオン質量分析(Secondary-Ion Mass Spectrometry : SIMS)法[3]により基板中のプロトン濃度プロファイルや導波路深さ、プリズムカブラ法[4], [5]により屈折率分布や導波路の深さの評価が行なわれている。しかし、将来、デバイスの大量生産に最適な作製システムおよびプロセスの条件を評価・確立することを考えると、SIMS法には試料の破壊を伴う、定量性に欠けるなどの問題点があり、プリズムカブラ法にはシングルモードとなる導波路に対しては原理的に適用できないという問題点があるため、微小領域の測定を二次元的に広範囲にわたって行なうことのできる新しい定量的な評価技術の開発が必要と考える。

直線集束ビーム(Line-Focus-Beam : LFB)超音波顕微鏡は、水/試料境界面上に漏洩弾性表面波(Leaky Surface Acoustic Wave : LSAW)を励振し、その伝搬特性(位相速度・伝搬減衰)を高精度に測定することにより定量的に材料の弾性特性評価を行なうシステムである[6]。LFB超音波顕微鏡は、非接触・非破壊的に材料の微小領域の測定ができる、材料の異方性を忠実に反映した測定ができる、広範囲にわたって二次元分布の測定ができるなどの特徴をもつ。本代表研究者らは、本システムを用いたプロトン交換光導波路およびその作製プロセスの評価法を提案している[7]。これまでに、Z-cut LiNbO<sub>3</sub>およびZ-cut LiTaO<sub>3</sub>を取り上げ、(1)評価に最適な伝搬方向がY軸方向伝搬であること、(2)LSAW速度の周波数依存性を測定することにより、プロトン交換層の深さや基板中のプロトン濃度プロファイルなどに関する情報が得られること、(3)周波数一定のもとでLSAW速度を二次元的に測定することにより、ピロ磷酸中の温度分布に起因した拡散係数の違いや、ピロ磷酸中のプロトン濃度分布が分かることを示し、本システムによるプロトン交換光導波路

およびその作製プロセスの特性解析・評価の可能性を示した[7]。

本章では、 $\text{LiTaO}_3$ プロトン交換試料に対して得られたLSAW速度測定値とプロセスの条件との関係について基礎的な検討を行なう。まず、LSAW速度とプロトン交換層深さおよびプロトン拡散係数との関係を明らかにし、LSAW速度からプロトン交換層深さおよびプロセス条件を評価する方法について検討する。次に、この手法をLSAW速度の二次元分布の測定結果に適用し、プロトン交換層の深さおよびプロセス条件の分布を定量的に推定し作製プロセスの評価を試みる。

## 6-2 試料の作製

プロトン交換とは、加熱した安息香酸やピロリン酸などの酸溶液中に $\text{LiTaO}_3$ 基板を一定時間浸し、酸溶液中のプロトンを基板中のリチウムイオンと置換させ、基板内に拡散させるものである。その結果、異常光屈折率の大きい表面層が形成される。 $\text{LiTaO}_3$ 基板においては、このままでは光の伝搬損失が比較的大きいため、さらにアニーリング処理を行なうことにより伝搬損失を低減させたのちに光導波路として用いられる[8]。

ここでは $15\text{ mm} \times 15\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$ のZ-cut  $\text{LiTaO}_3$ 基板を実験に用い、プロトン交換プロセスに対して検討する。試料は次のように2通りの方法により作製した。まず、LSAW速度と拡散係数との関係を調べるために、Z-cut  $\text{LiTaO}_3$ 基板を $260^\circ\text{C}$ に加熱した後に、 $260^\circ\text{C}$ に熱したピロリン酸中にFig. 1に示すように浸して、基板全面を14分間プロトン交換した試料を用意した。これを試料Aとする。この作製条件はSHGデバイスの作製において光導波路作製プロセスで用いられるものである[1]。比較のために未処理の基板も用意した。次に、基板内での導波路の深さの分布やプロセスの条件の分布を定量的に推定するために、あらかじめLSAW速度の二次元分布を測定した後に、十分に加熱をしていない基板を $260^\circ\text{C}$ に熱したピロリン酸中にFig. 1に示すように浸して、基板全面を14分間プロトン交換した試料を用意した。これを試料Bとする。

## 6-3 実験

測定方法は、文献[6]に詳しい。LFB超音波顕微鏡システムは、LFB超音波デバイス／試料間の相対距離を変化させたときに得られる干渉波形 $V(z)$ 曲線を測定・解析することにより、水／試料境界面上を伝搬するLSAWの位相速度、伝搬減衰

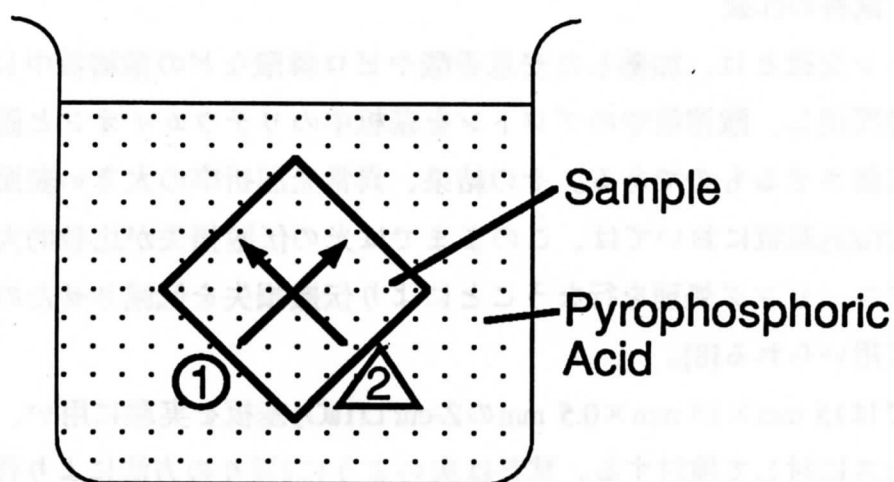


Fig. 1 Sample preparation.

を測定できる。ここでは、LSAW速度を評価に用いる。SHGデバイスは結晶基板の-c面に作製されるため、-c面に対して測定を行なった。LSAW伝搬方向は、プロトン交換によるLSAW速度変化が最も大きく、感度が最も高いY軸方向伝搬とした[7]。

### 6-3-1 LSAW速度の周波数依存性の測定

層状構造媒質の表面上を伝搬するLSAWの伝搬特性は、一般に分散性を示し超音波周波数 $f$ と表面層深さ $H$ の積 $fH$ に依存する。そこで、試料Aの中央付近で、超音波周波数を100~300 MHzの範囲で5 MHz毎にLSAW速度の周波数依存性を測定した。Fig. 2に測定結果を示す。同図中に未処理基板に対する測定結果も示す。層状構造媒質ではない未処理のZ-cut LiTaO<sub>3</sub>基板にも見かけ上速度の周波数依存性が現れている。これは、測定システムおよびLFB超音波デバイスの周波数特性を反映している[9]。プロトン交換試料に対する測定結果にもこれらの影響が含まれていると考える。これらのLSAW速度測定値に対する影響については、現在、標準試料を用いた校正方法が検討されている[10]が、ここでは、未処理基板に対する測定結果との差分を取ることでこの影響を近似的に除去した。また、これによりプロトン交換によるLSAW速度変化 $\Delta V_{\text{LSAW}}$ を抽出できると考える。Fig. 3にその結果を示す。LSAW速度は直線的に変化し、高周波ほど低下している。最小二乗近似により求めた直線の傾きは $-0.32 \text{ (m/s)/MHz}$ である。Z-cut LiTaO<sub>3</sub>基板表面に形成されたプロトン交換層はLSAW速度の遅い弾性特性を持つ[7]。したがって、高周波ほど表面波のエネルギーが試料表面近傍に集中するため、プロトン交換層の弾性特性がより反映されLSAW速度が低下している。LSAW速度の周波数依存性は、プロトン交換層中のプロトンの基板深さ方向の濃度分布やプロトン交換層の深さを反映していると考えられる。

### 6-3-2 二次元分布の測定

プロトン交換プロセスにおける条件の均一性を評価するために試料Bに対して、Fig. 1に示す2本の矢印上で、プロセスの前後において同じ位置でLSAW速度を1 mm毎に測定した。超音波周波数は225 MHzである。Fig. 4に測定結果を示す。○および△はFig. 1中のそれぞれ①、△の矢印上で測定した結果を表す。プロセス前の測定値で規格化することにより $\Delta V_{\text{LSAW}}$ を抽出できる。Fig. 5にプロセス前の測定

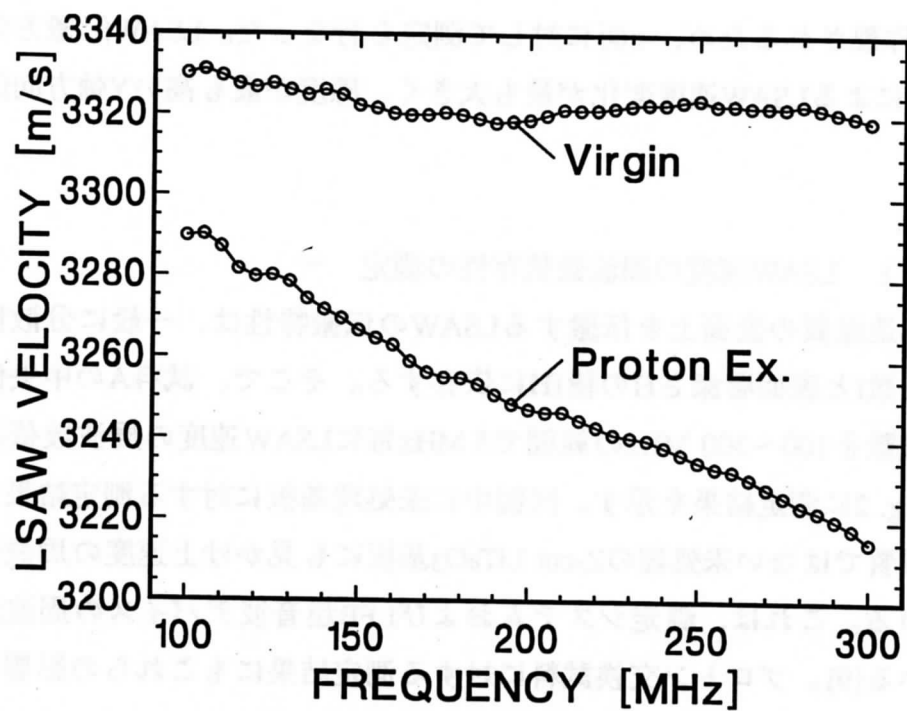


Fig. 2 Apparent frequency dependence of LSAW velocities for ZY-LiTaO<sub>3</sub> samples.

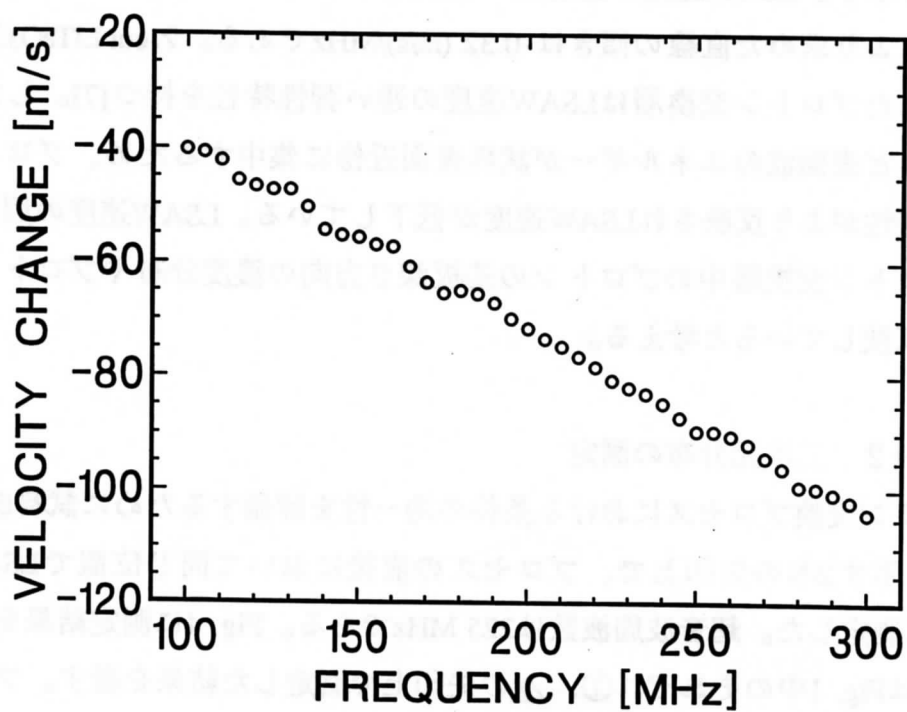


Fig. 3 Frequency dependence of LSAW velocity change for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

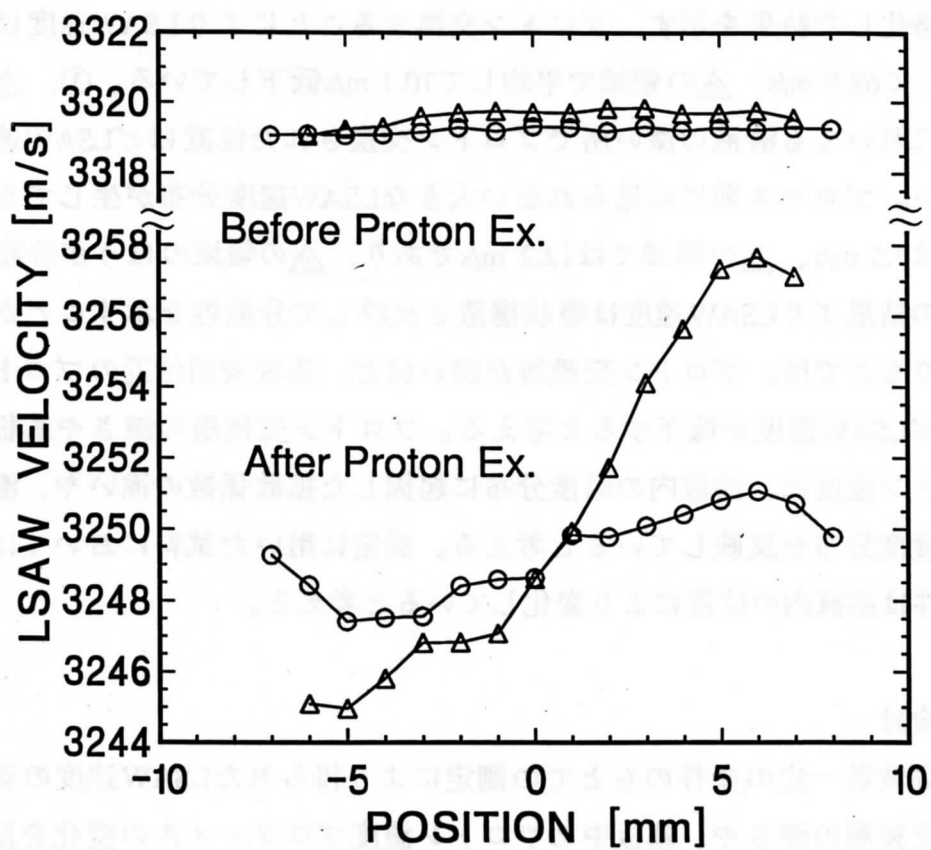


Fig. 4 LSAW velocity profiles for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

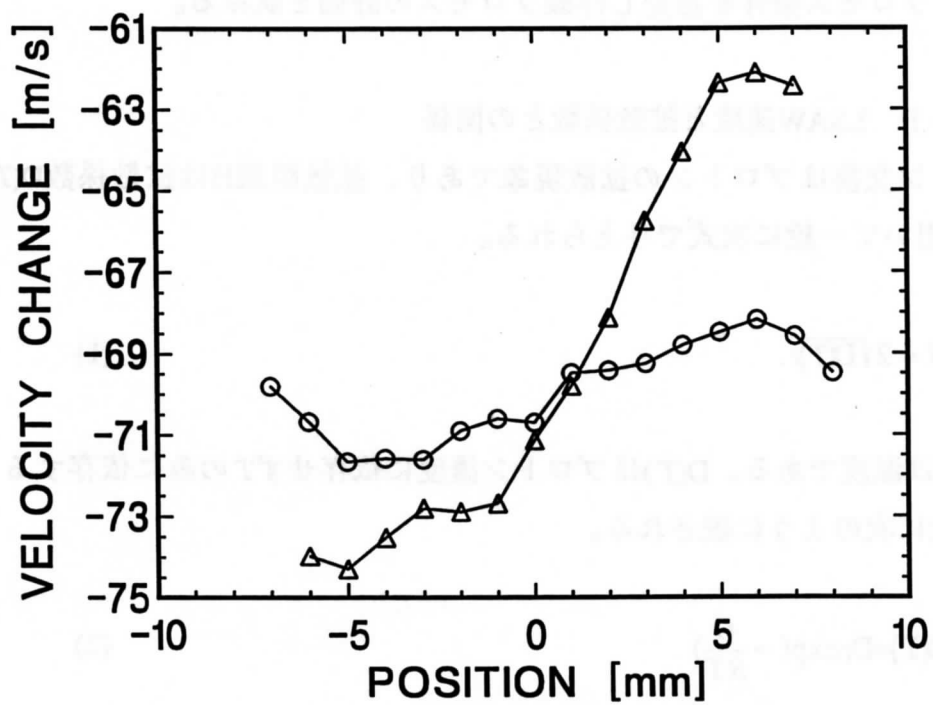


Fig. 5 LSAW velocity change profiles for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

定値で規格化した結果を示す。プロトン交換することによりLSAW速度は①の領域で平均して68.8 m/s、△の領域で平均して70.1 m/s低下している。①、△のどちらの領域においても溶液の深い所でプロトン交換された位置ほどLSAW速度の変化が大きい。プロセス前には見られない大きなLSAW速度分布が生じており、①の領域では3.5 m/s、△の領域では12.2 m/sであり、△の領域のほうが分布が大きい。前節の結果よりLSAW速度は層状構造を反映して分散性を示すことから、周波数一定のもとでは、プロトン交換層が深いほど、基板表面付近のプロトン濃度が高いほどLSAW速度が低下すると考える。プロトン交換層の深さや基板表面付近のプロトン濃度は、溶液内の温度分布に起因した拡散係数の違いや、溶液内のプロトン濃度分布を反映していると考ええる。測定に用いた試料においては、プロセスの条件は溶液内の位置により変化していると考ええる。

#### 6-4 検討

前節の周波数一定の条件のもとでの測定により得られたLSAW速度の変化は、プロトン交換層の深さや、基板中のプロトン濃度プロファイルの変化を反映していると考えられる。そこで本節では、LSAW速度とプロトン交換層深さおよびプロトン拡散係数との関係について検討し、プロセス条件との関係を求める。次に、この手法をLSAW速度の二次元分布の測定結果に適用して、プロトン交換層の深さおよびプロセス条件を推定し作製プロセスの評価を試みる。

##### 6-4-1 LSAW速度と拡散係数との関係

プロトン交換はプロトンの拡散現象であり、拡散距離 $H$ は拡散係数 $D(T)$ 、拡散時間 $t$ を用いて一般に次式で与えられる。

$$H = 2\sqrt{D(T)t} \quad (1)$$

ここで $T$ は温度である。 $D(T)$ はプロトン濃度に依存せず $T$ のみに依存すると仮定すると一般に次のように表される。

$$D(T) = D_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (2)$$



ここで、 $Q$ :活性化エネルギー、 $R$ :気体定数、 $T$ :温度、 $D_0$ :定数である。(2)を(1)に代入すると以下の式が得られる。

$$H = 2\sqrt{D_0} \exp\left(-\frac{Q}{2RT}\right) \quad (3)$$

文献[11]において、式(3)がアレニウスプロットから実験的に以下のように求められている。

$$H = 6.81 \times 10^3 \sqrt{t} \exp\left(-\frac{4.73 \times 10^3}{T}\right) (\mu\text{m}) \quad (4)$$

式(4)に $t=14/60$  hour、 $T=533.15$  Kを代入することにより、実験に用いたプロトン交換層の深さを $0.461 \mu\text{m}$ と見積もることができる。プロトン交換層は拡散層であるが、基板深さ方向のプロトン濃度分布はステップ関数的であることが報告されている[1]。そこで、プロトン交換層を均質な単一層と仮定すると、 $H=0.461 \mu\text{m}$ とFig. 2とから、 $\Delta V_{\text{LSAW}}$ の $fH$ 依存性をFig. 6のように得ることができる。○は $\Delta V_{\text{LSAW}}$ の測定値を表す。Fig. 6中に示した直線は最小二乗近似により求めたものであり、以下のようなになる。

$$\Delta V_{\text{LSAW}} = -0.70 fH - 7.32 \text{ (m/s)} \quad (5)$$

式(5)から、ある超音波周波数 $f$ で測定された $\Delta V_{\text{LSAW}}$ と $H$ との関係を以下のように得ることができる。

$$H = \frac{\Delta V_{\text{LSAW}} + 7.32}{0.7f} (\mu\text{m}) \quad (6)$$

Fig. 7に $f=225$  MHzの場合のグラフを示す。式(6)を(1)に代入することにより、以下のように $D(T)$ と $\Delta V_{\text{LSAW}}$ との関係を得ることができる。

$$D(T) = \frac{(\Delta V_{\text{LSAW}} + 7.32)^2}{1.96f^2 t} (\mu\text{m}^2/\text{h}) \quad (7)$$

これより $D(T)$ は $\Delta V_{\text{LSAW}}$ の2次式で表される。Fig. 8に $f=225$  MHz、 $t=14/60$  hourの場



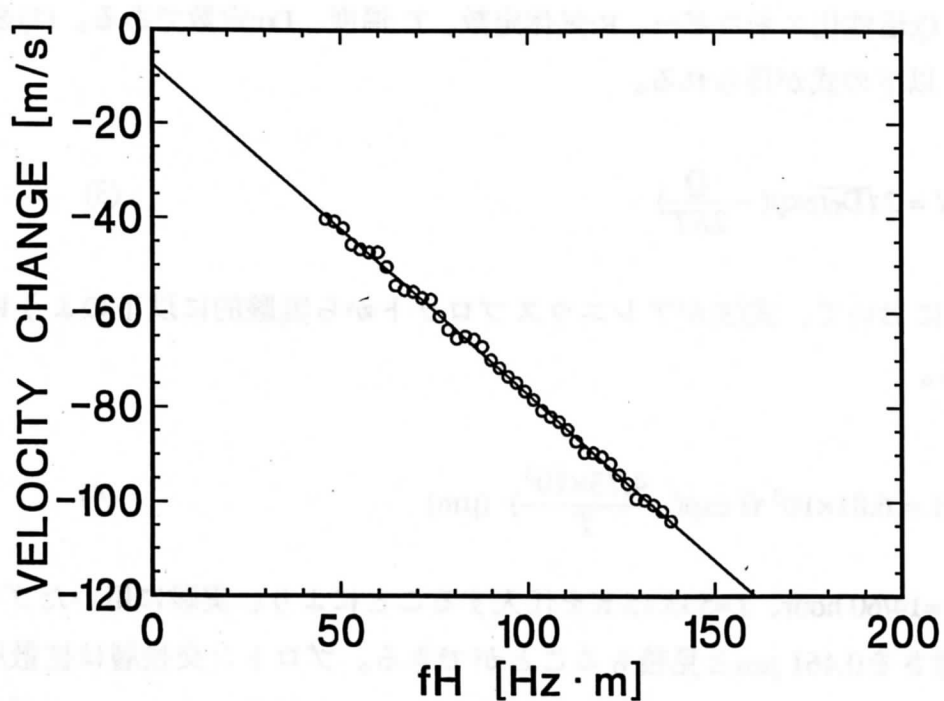


Fig. 6  $fH$  dependence of LSAW velocity change for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

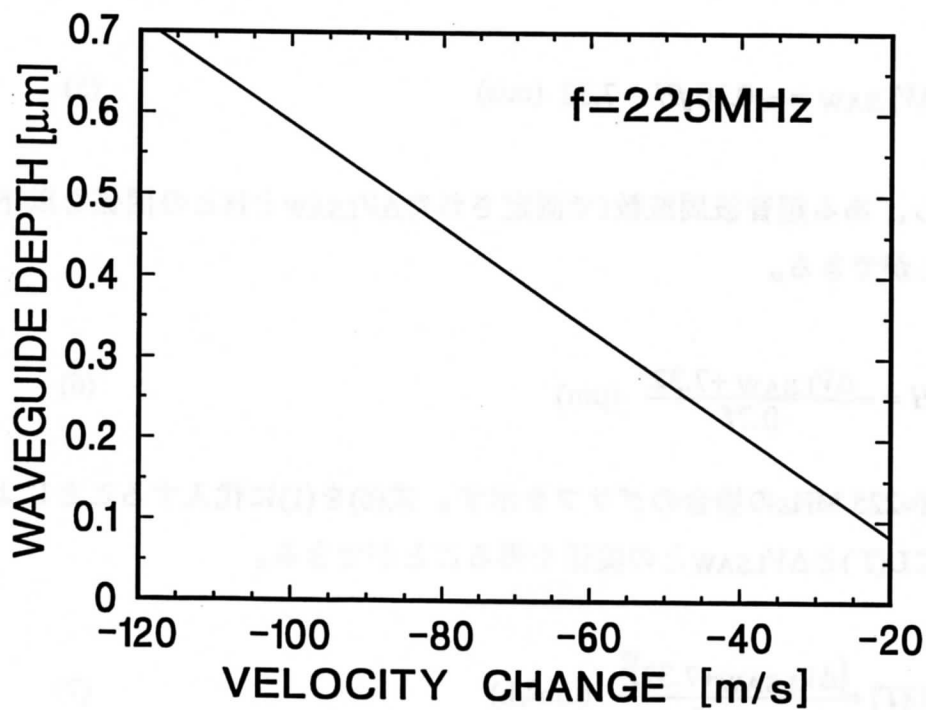


Fig. 7 Relationship between LSAW velocity change and waveguide depth for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

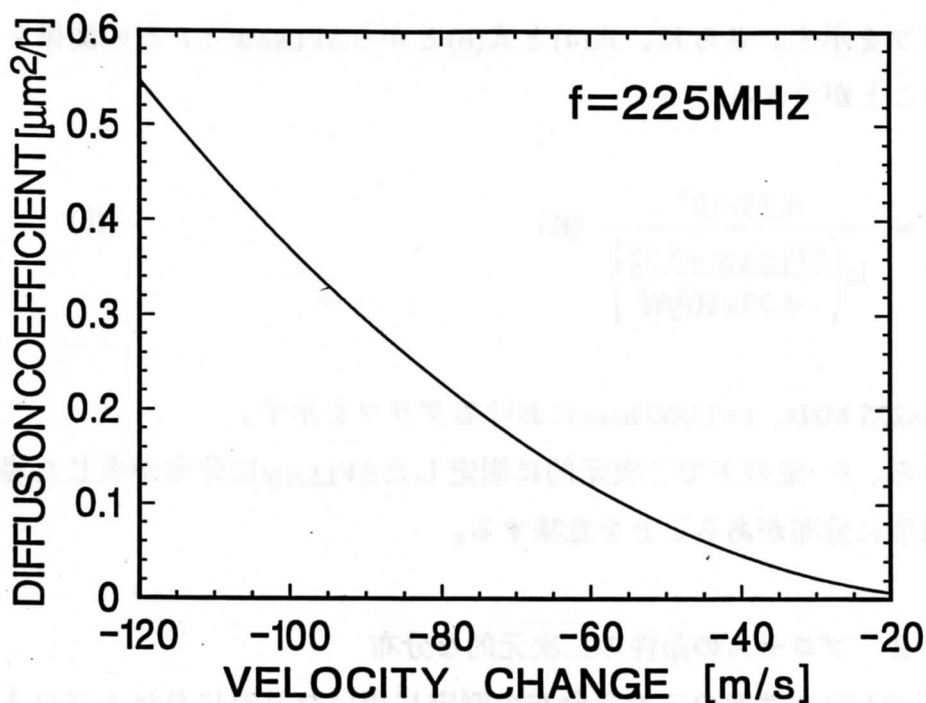


Fig. 8 Relationship between LSAW velocity change and diffusion coefficient for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

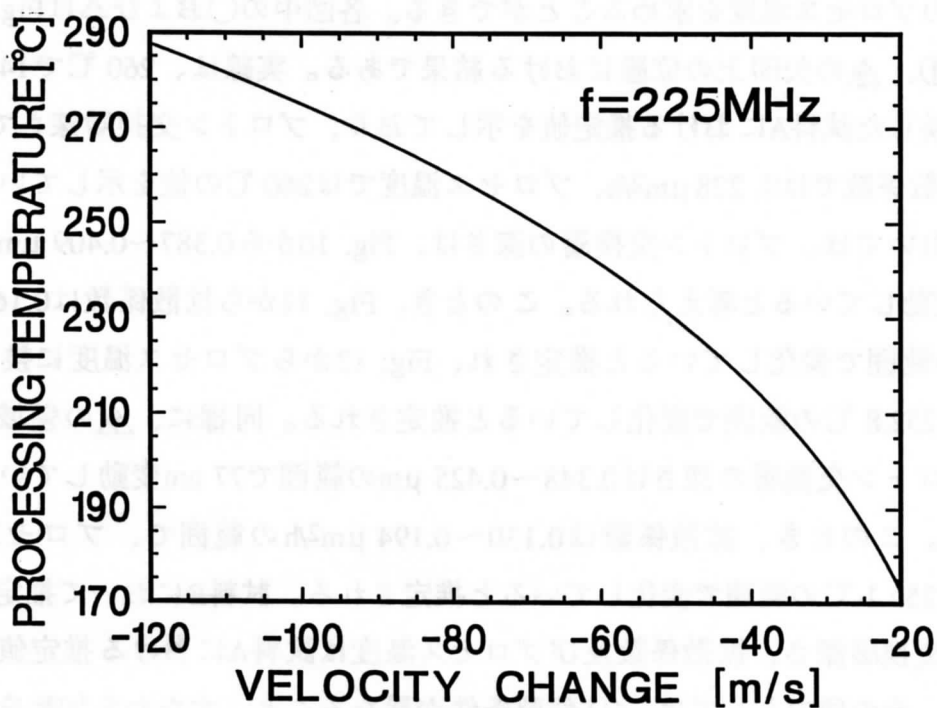


Fig. 9 Relationship between LSAW velocity change and processing temperature for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

合のグラフを示す。さらに、式(4)と式(6)とから $\Delta V_{\text{LSAW}}$ と $T$ との関係を以下のよ  
うに得ることができる。

$$T = \frac{4.73 \times 10^3}{\ln \left( \frac{\Delta V_{\text{LSAW}} + 7.32}{-4.77 \times 10^3 f \sqrt{t}} \right)} \quad (\text{K}) \quad (8)$$

Fig. 9に $f=225 \text{ MHz}$ 、 $t=14/60 \text{ hour}$ におけるグラフを示す。

以上から、 $f$ 一定の下で二次元的に測定した $\Delta V_{\text{LSAW}}$ に分布が生じた場合、拡散  
係数や温度に分布があることを意味する。

#### 6-4-2 プロセスの条件の二次元的な分布

6-3-2節のLSAW速度の二次元分布の測定に用いた試料におけるプロトン交換層  
を均質な単一層であると仮定すると、6-4-1節の検討結果を適用でき、プロトン交  
換層深さの分布やプロセス条件の分布を定量的に推定することができる。Fig. 5の  
結果に対してFig. 7、Fig. 8、Fig. 9の結果を適用すると、Fig. 10、Fig. 11、Fig. 12  
に示すようにそれぞれプロトン交換層の深さの分布、拡散係数の分布、プロトン  
交換時のプロセス温度を求めることができる。各図中の○および△はFig. 1中のそ  
れぞれ①、△の矢印上の位置における結果である。実線は、260℃で14分間プロ  
トン交換した試料Aにおける推定値を示しており、プロトン交換層深さでは0.461  
 $\mu\text{m}$ 、拡散係数では0.228  $\mu\text{m}^2/\text{h}$ 、プロセス温度では260℃の値を示している。①の  
領域においては、プロトン交換層の深さは、Fig. 10から0.387~0.409  $\mu\text{m}$ の範囲で  
22 nm変動していると考えられる。このとき、Fig. 11から拡散係数は0.160~0.179  
 $\mu\text{m}^2/\text{h}$ の範囲で変化していると推定され、Fig. 12からプロセス温度に換算すると  
249.5~252.8℃の範囲で変化していると推定される。同様に、△の領域において  
は、プロトン交換層の深さは0.348~0.425  $\mu\text{m}$ の範囲で77 nm変動していると考え  
られる。このとき、拡散係数は0.130~0.194  $\mu\text{m}^2/\text{h}$ の範囲で、プロセス温度は  
243.5~255.1℃の範囲で変化していると推定される。試料Bにおいて推定されたプ  
ロトン交換層深さ、拡散係数及びプロセス温度は試料Aにおける推定値と異なっ  
ている。その理由としては、(1)作製条件が異なること、すなわち加熱を十分に行  
なわなかった基板を260℃に熱したピロ磷酸中に入れたために、基板の温度が260  
℃に達するまで時間がかかり、その時間分だけ所望のプロセス条件とは異なる条

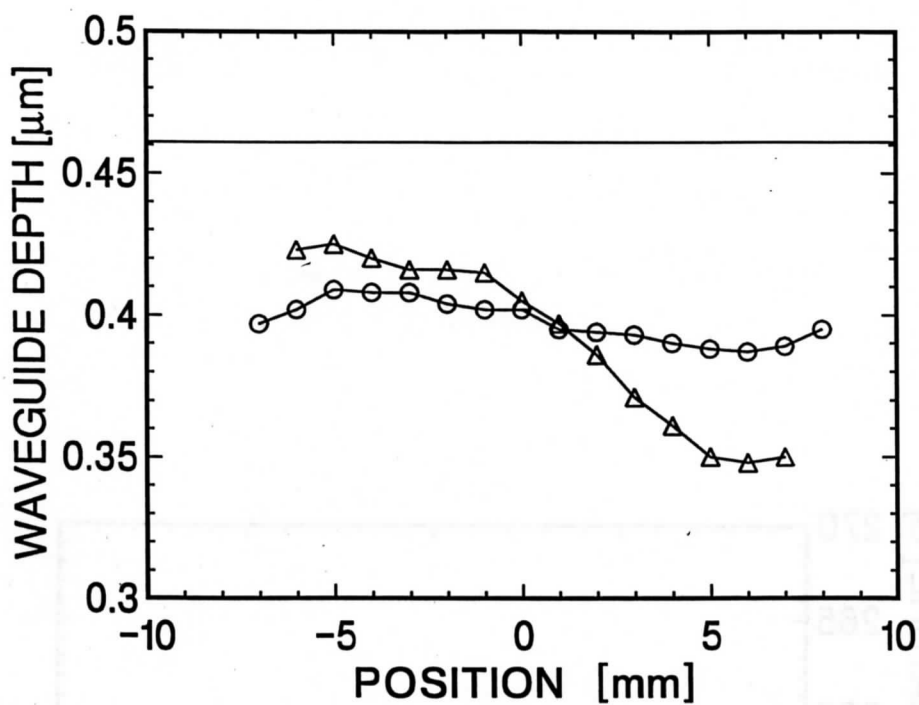


Fig. 10 Estimated profiles of waveguide depth for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

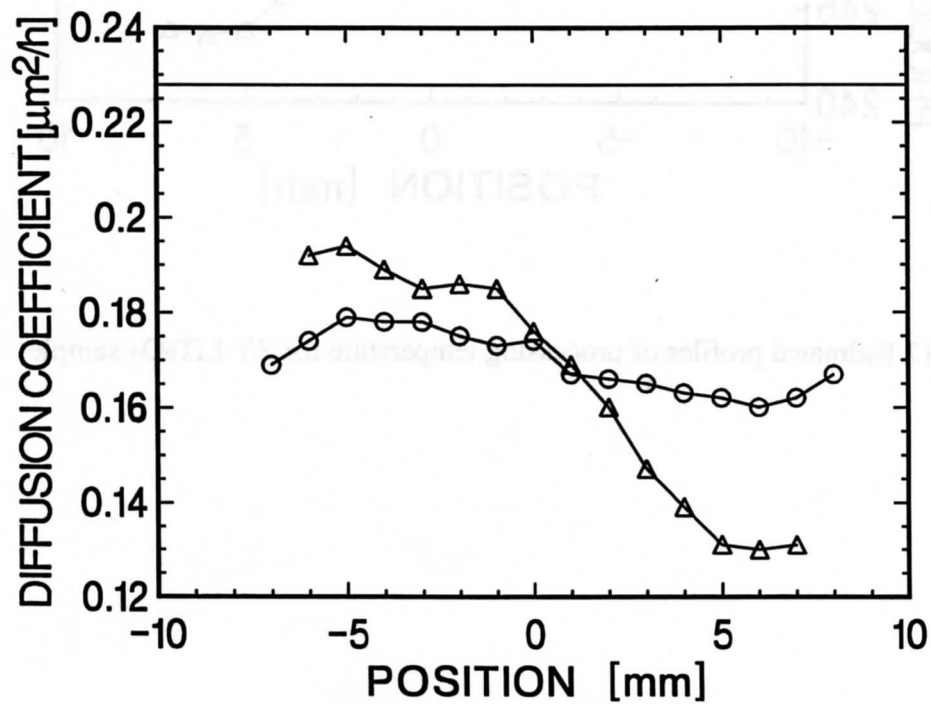


Fig. 11 Estimated profiles of diffusion coefficient for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

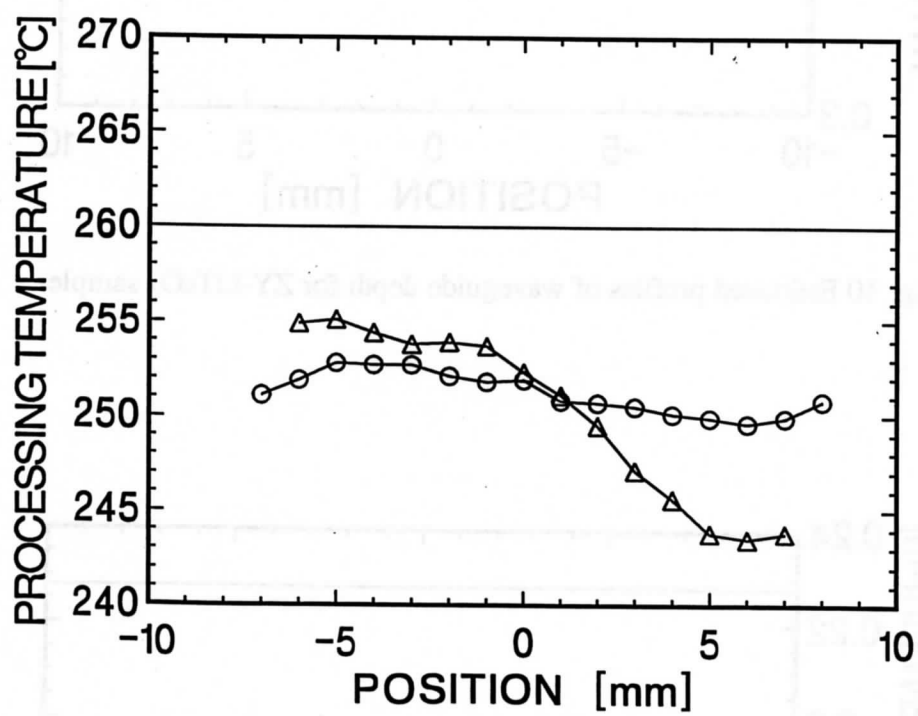


Fig. 12 Estimated profiles of processing temperature for ZY-LiTaO<sub>3</sub> sample.

件で処理されたこと、(2) 試料A、試料Bおよび未処理基板それぞれのLiTaO<sub>3</sub>基板自体の弾性特性が異なることなどが考えられる。

#### 6-5 あとがき

本章では、LFB超音波顕微鏡を用いて測定されたLSAW速度と、プロトン交換層深さおよびプロセス条件との関係について検討した。プロトン交換層を均質な単一層と仮定して、LSAW速度とプロトン交換層深さおよび拡散係数との関係を明らかにした。さらに、文献により与えられる拡散係数を用いて、LSAW速度とプロセス温度とを関係づけ、LSAW速度からプロセスの条件を定量的に評価する方法について検討した。この手法をLSAW速度の二次元分布の測定結果に適用し、プロトン交換層の深さおよびプロセスの条件の分布を定量的に推定し作製プロセスの評価を試みた。その結果、LFB超音波顕微鏡によるプロトン交換層およびその作製プロセスの特性解析・評価の可能性を示した。将来のデバイスの大量生産において、最適な作製システムおよびプロセスの条件を評価・確立するための新しい定量評価技術として期待できる。

## 6章の参考文献

- [1] K. Yamamoto, K. Mizuuchi, Y. Kitaoka, and M. Kato, "High power blue light generation by frequency doubling of a laser diode in a periodically domain-inverted LiTaO<sub>3</sub> waveguide," *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 62, No. 21, pp. 2599-2601, 1993.
- [2] J. L. Jackel, C. E. Rice, and J. J. Veselka, "Proton exchange for high-index waveguides in LiNbO<sub>3</sub>," *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 41, No. 7, pp. 607-608, 1982.
- [3] 大西孝治、堀池靖浩、吉原一紘、[固体表面分析I]、講談社サイエンティフィク、pp. 196-257、1995.
- [4] P. K. Tien and R. Ulrich, "Theory of prism-film coupler and thin-film light guides," *J. Opt. Soc. Am.*, Vol. 60, No. 10, pp. 1325-1337, 1970.
- [5] J. M. White and P. F. Heidrich, "Optical waveguide refractive index profiles determined from measurement of mode indices : a simple analysis," *Appl. Opt.*, Vol., Vol. 15, No. 1, pp. 151-155, 1976.
- [6] J. Kushibiki and N. Chubachi, "Material characterization by line-focus-beam acoustic microscope," *IEEE Trans. Son. Ultrason.*, Vol. SU-32, No. 2, pp. 189-212, 1985.
- [7] 宮下雅仁、小野雄、櫛引淳一、中鉢憲賢、[直線集束ビーム超音波顕微鏡によるプロトン交換LiNbO<sub>3</sub>、LiTaO<sub>3</sub>光導波路とその作製プロセスの評価]、電子情報通信学会、信学技報、US94-53 (1994-09).
- [8] K. Yamamoto K. Mizuuchi, and T. Taniuchi, "Low-loss channel waveguides in MgO:LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> by pyrophosphoric acid proton exchange," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 31, No. 4, pp. 1059-1064, 1992.
- [9] 小野雄、櫛引淳一、中鉢憲賢、[直線集束ビーム超音波顕微鏡におけるV(z)曲線形成機構の実験的検討]、電子情報通信学会、信学技報、US94-51 (1994).
- [10] J. Kushibiki, T. Wakahara, T. Kobayashi, and N. Chubachi, "A calibration method of the LFB acoustic microscope system using isotropic standard specimens," 1992 IEEE Ultrason. Symp., pp. 719-722.
- [11] K. Mizuuchi and K. Yamamoto, "Characteristics of periodically domain-inverted LiTaO<sub>3</sub>," *J. Appl. Phys.*, Vol. 72, No. 11, pp. 5061-5068, 1992.

## 7. 直線集束ビーム超音波顕微鏡によるLiTaO<sub>3</sub>分極反転層の評価

### Characterization of Domain-Inverted Layers in LiTaO<sub>3</sub> by Line-Focus-Beam Acoustic Microscopy

#### ABSTRACT

A characterization procedure of domain-inverted layers employed in LiTaO<sub>3</sub> optoelectronic devices by line-focus-beam acoustic microscopy is explored. A special specimen of -Z-cut LiTaO<sub>3</sub> with a domain-inverted layer of about 1.8  $\mu\text{m}$  thickness, processed under the fabrication conditions for quasi-phase-matching second-harmonic-generation devices, was prepared for measurements of the leaky surface acoustic wave (LSAW) velocities in the frequency range 100 to 300 MHz. Intrinsic decreases in LSAW velocity were obtained with the rate of 0.127 m/s/MHz, which were in excellent agreement with the theoretical results. These resulted from formation of a domain-inverted layer on the -Z surface. Slight variations in domain-inverted depth on the specimen, caused by variation in process temperature, were also detected, with the measurement resolution of 0.01  $\mu\text{m}$  at 225 MHz.



Many promising applications of line-focus-beam (LFB) acoustic microscopy [1] have been proposed and developed in research fields of scientific and industrial problems associated with waveguide-type optoelectronic devices [2,3]. Recently, characterization and evaluation of proton-exchanged/annealed optical waveguides and fabrication processes employed for quasi-phase-matching second-harmonic-generation (QPM-SHG) devices [4], using Z-cut  $\text{LiTaO}_3$  substrate, have been demonstrated to have superior sensitivity in evaluating the optical waveguide parameters of diffusion depth and refractive index [3]. In these devices, another process technique of domain inversion on the -Z surface of Z-cut  $\text{LiTaO}_3$  substrates [4] plays a very important role in fabricating a device structure composed of periodically domain-inverted gratings with an interval of 4  $\mu\text{m}$  and a depth of 1.8  $\mu\text{m}$  over a 10 mm length [5]. It is necessary to control precisely the process temperatures for the quick heat treatment of a rapid rising rate and short soak time using an infrared heater, as well as for proton exchange before the domain inversion process.

In the present study, the application is extended to characterization of the domain-inverted layers, and simulation experiments to obtain its characterization procedure and basic data are conducted employing a special sample of Z-cut  $\text{LiTaO}_3$  on which the entire -Z surface is domain-inverted.

One Z-cut  $\text{LiTaO}_3$  substrate (Yamaju Ceramics Co., Seto, Japan), 20 mm X 10 mm X 0.5 mm, was processed under the fabrication conditions of periodically domain-inverted  $\text{LiTaO}_3$  for QPM-SHG devices [5]. In the process, proton-exchanged layers were first formed on both surfaces of the substrate by being immersed in pyrophosphoric acid heated at 260 °C for 20 min. The substrate was processed to the next stage of quick heat treatment at 540 °C for 30 sec with the rising rate of 80 °C/s and soak time of 30 sec, in order to fabricate a domain-inverted layer on the -Z surface. Furthermore, the substrate was annealed at 420 °C for 6 hours. Annealing

is a necessary process to diffuse protons in the proton-exchanged area formed on the surface into the substrate for decreasing the difference in refractive index between domain-inverted and uninverted regions before fabricating a low-loss optical waveguide for LiTaO<sub>3</sub> QPM-SHG devices [5]. According to reference 5, the thickness of the domain-inverted region under the employed conditions is about 1.8  $\mu\text{m}$ , and the annealing does not affect the boundary position between the domain-inverted and uninverted regions. On the +Z surface, there also exists the proton-exchanged layer followed by the same quick heat treatment and the same annealing, but with no domain inversion. In addition, a virgin Z-cut LiTaO<sub>3</sub> substrate was also prepared as the reference specimen for velocity measurements.

Measurements of the phase velocity of LSAWs propagating on the water-loaded sample surface using the LFB acoustic microscopy system were carried out for both +Z and -Z surfaces of the specimen and for the virgin non-processed specimen. First of all, the angular dependence and frequency dependence of LSAW velocities were measured near the center of the specimens to understand the variations in acoustic properties on each surface by the fabrication processes. The details of the measurement method and system were presented elsewhere [1].

Figure 1 shows the results of the angular dependence of LSAW velocities which were measured at 225 MHz by changing the wave propagation direction by 180° at intervals of 1°. The propagation directions of 0° and 90° correspond to the crystallographic X-axis and Y-axis directions, respectively. In this figure, (a) shows the measured results for the virgin specimen, (b) those for the +Z surface of the processed specimen, and (c) those for the -Z surface. All the measured curves exhibit symmetrical cycles for every 60°, reflecting the symmetry of the Z-cut LiTaO<sub>3</sub>. The fabrication processes employed for domain inversion cause the LSAW velocities to decrease in all propagation directions. The velocity decreases on the +Z surface, viz., 15.5-19.7 m/s, are due to the fact

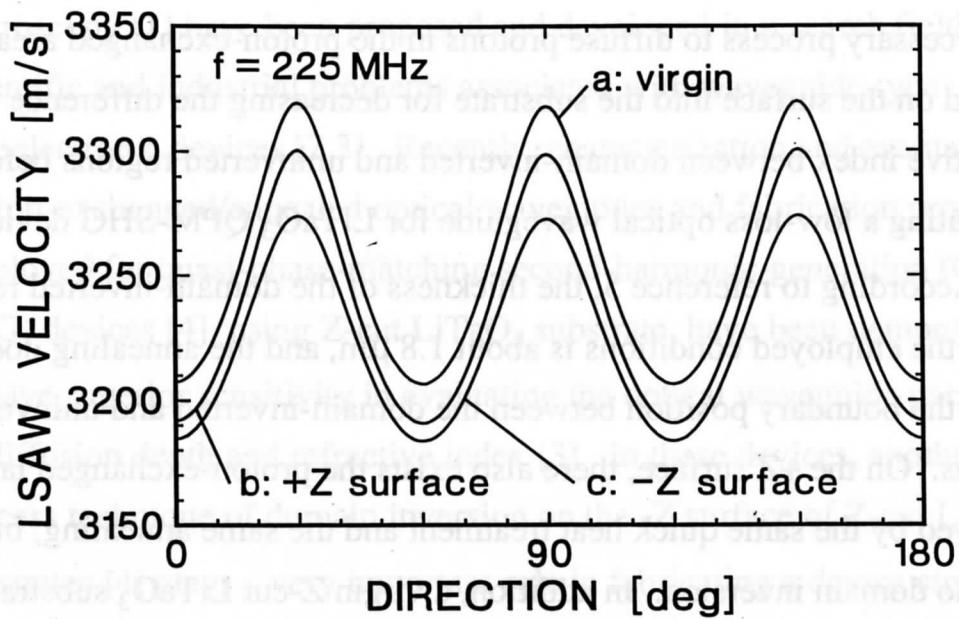


Fig. 1. Measured LSAW velocities for Z-cut LiTaO<sub>3</sub> specimens.

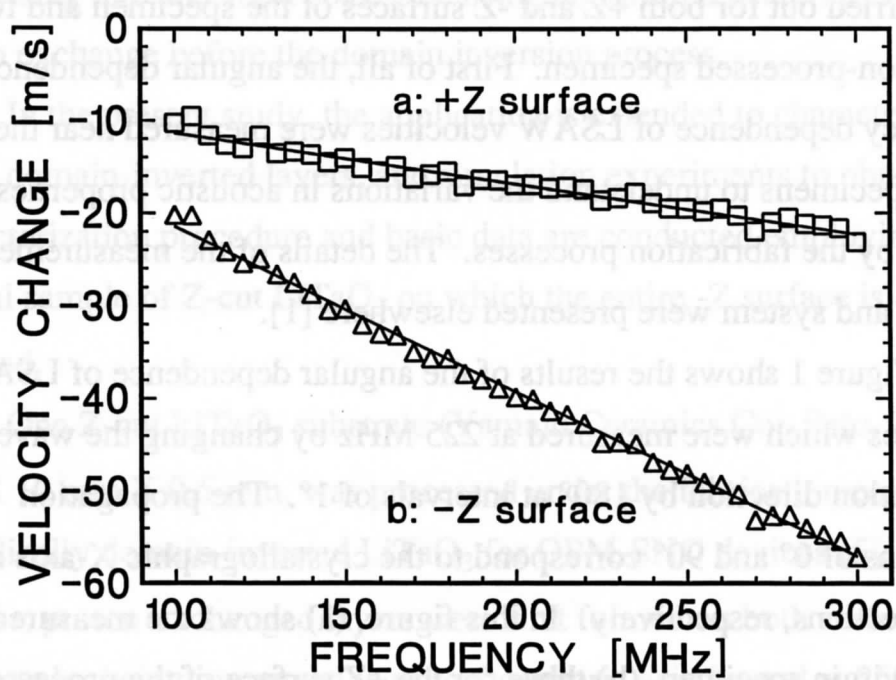


Fig. 2. Relative LSAW velocity dispersions for ZY-LiTaO<sub>3</sub> specimens.

that the proton-exchanged and diffused layer with the acoustic property of a slower LSAW velocity is formed on the surface, as discussed in the literature [3]. On the other hand, the velocities on the -Z surface with the domain-inverted layer decrease by approximately 22.9-45.4 m/s. Measurement sensitivity is highest in the Y-axis direction for both the surfaces, so that the Y-axis direction wave propagation should be employed for characterization.

To characterize the formed domain-inverted layer, the frequency characteristics were measured at intervals of 5 MHz in the frequency range of 100-300 MHz for each surface of the Z-cut Y-propagating (ZY) LiTaO<sub>3</sub> specimen. Figure 2 shows the measured results of velocity changes relative to the results measured for the virgin specimen. It is clear that, as the frequency increases, the LSAW velocities monotonically decrease with the rates of 0.047 m/s/MHz for the +Z surface and 0.174 m/s/MHz for the -Z surface, approximated by the least-squares method.

Assuming for both the surfaces the same proton-exchange and the same quick heat treatment and annealing, the differences between these two frequency characteristics might stand for intrinsic frequency characteristics of the LSAW velocities for an ideal model of the domain-inverted layer on -Z-cut LiTaO<sub>3</sub> substrate having no influence by proton exchange and heat treatment. The results obtained by subtraction between the curves b and a in Fig. 2 indicate a gradient of -0.127 m/s/MHz, and are plotted by the open circles in Fig. 3, using a value of 1.8  $\mu\text{m}$  for the layer thickness. In the figure, the solid line is for the theoretical results [6] calculated for the ideal model with the domain-inverted depth of 1.8  $\mu\text{m}$  on the -Z-cut LiTaO<sub>3</sub> substrate, using the physical constants reported by Warner et al. [7]. The calculated curve exhibits the velocity changes of the dependence on the product  $fH$  of ultrasonic frequency  $f$  and layer thickness  $H$ , showing the differences from the velocity value of 3318 m/s at  $fH=0$  Hz·m. This can be thought of in terms of a kind of electric-field short-

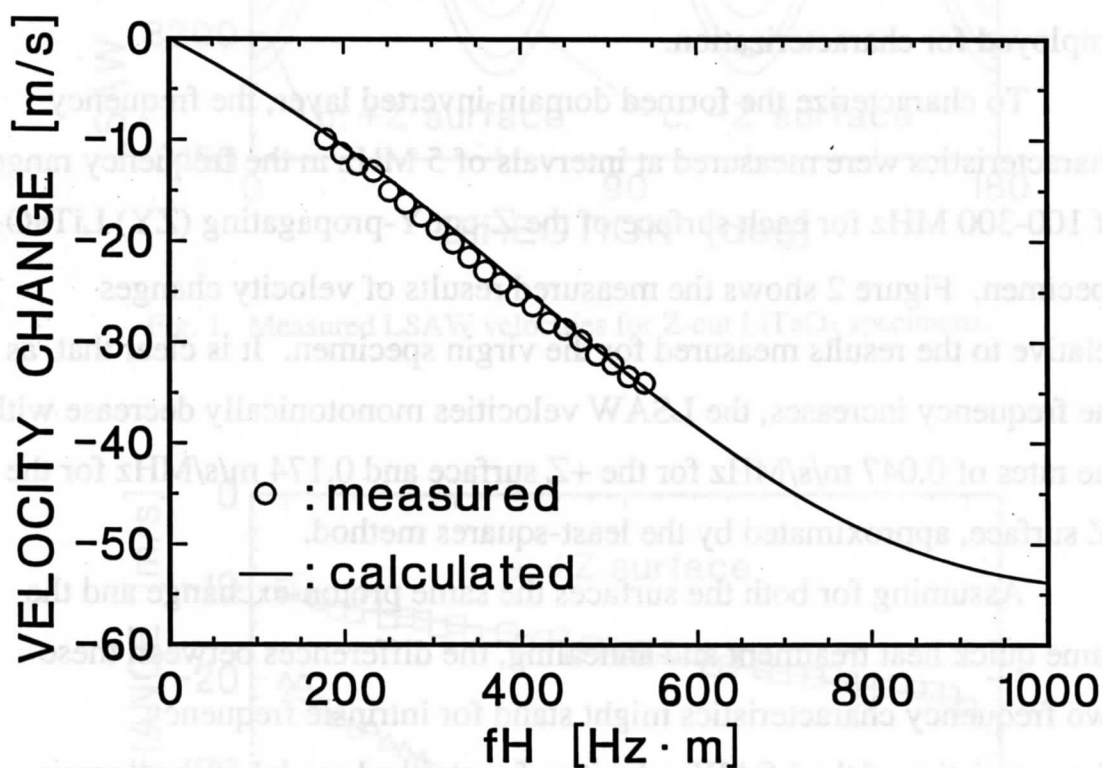


Fig. 3. Measured and calculated LSAW velocity dispersions for an ideal model of a domain-inverted layer on -Z-cut  $\text{LiTaO}_3$  substrate. The open circles are for the experimental values obtained by subtraction between the curves b and a in Fig. 2.

The theoretical value of LSAW velocity at  $fH=0 \text{ Hz} \cdot \text{m}$  is 3318 m/s.



circuited effect at the domain boundary [8]. The measured results are in excellent agreement with the theory. From the results shown in Fig. 3, the measurement sensitivity to the depth of domain inversion is approximated to be  $0.061 \mu\text{m/m/s}$ , so that the measurement resolution in depth can be estimated to be  $0.010 \mu\text{m}$  as the system accuracy is better than  $\pm 0.005 \%$  in velocity.

Next, a series of similar experiments for both surfaces of the specimen at 15 different positions at intervals of 1 mm at 225 MHz, shown in the inset of Fig. 4, were further conducted in the Y-axis propagation direction. Figure 4 shows the measured results, in which the velocities monotonically increase with distance from the left to the right hand side. The maximum difference of the velocities is 6.59 m/s, corresponding to the change in domain-inversion depth of  $0.40 \mu\text{m}$ , obtained from the measured data in Fig. 3. Considering the experimental processes employed, viz., proton exchange, quick heat treatment, and annealing, we can make an assumption to interpret the gradient of the velocities in Fig. 4 that the variations were caused by the temperature distribution in the furnace for the quick heat treatment as the depth depends mainly on the final process temperature under conditions of the same increasing rate of  $80^\circ\text{C/s}$  and same short soak time of 30 sec. The equation to estimate the inversion depth  $d$  is [5]

$$d = 4.27 \times 10^{10} t^{1/2} \exp(-1.75 \times 10^4 / T) + d_0 \text{ [}\mu\text{m]} \quad (1)$$

where  $d_0$  ( $=0.5 \mu\text{m}$ ) is the depth of the proton-exchange region processed under the proton-exchange conditions at  $260^\circ\text{C}$  for 20 min before heat treatment,  $t$  is the soak time, and  $T$  is the absolute temperature. The variations of the heat treatment temperature are estimated to be within  $\pm 5.8^\circ\text{C}$ . The measurement resolution of the process temperature is about  $0.29^\circ\text{C}$ , from the measurement accuracy in velocity measurements.

In this study, an experimental procedure for characterization of domain-inverted layers in  $\text{LiTaO}_3$  has been explored. The LSAW velocity

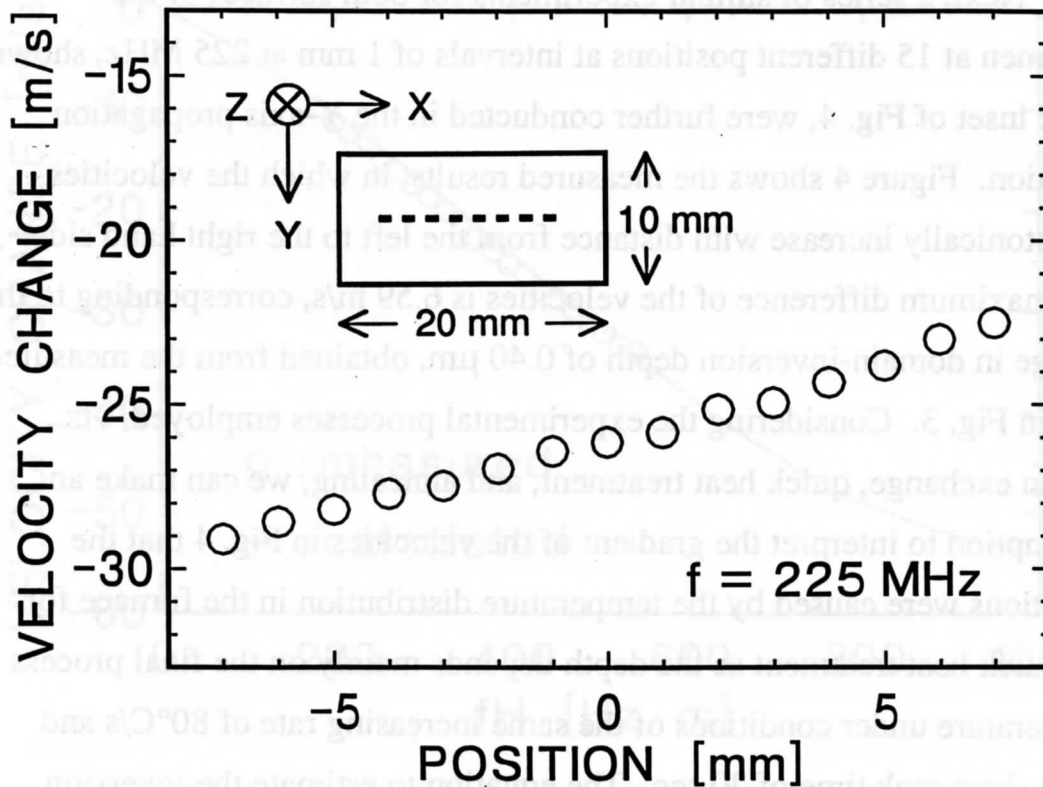


Fig. 4. Relative LSAW velocity profile for -Z surface of ZY-LiTaO<sub>3</sub> specimen with domain-inverted layer measured along the dotted line in the inset.

dispersion on the -Z-cut LiTaO<sub>3</sub> specimen has been observed, depending upon the product  $fH$  of ultrasonic frequency  $f$  and layer thickness  $H$ . It has been clarified that the dispersion results from two factors: one is due to a formation of a domain-inverted layer on the -Z surface, and the other is due to a formation of a proton-diffused layer. Thus, the intrinsic LSAW propagation characteristics for -Z-cut LiTaO<sub>3</sub>, with a domain-inverted layer, have been experimentally extracted. It has been demonstrated that the LFB system has a capability of detecting the changes of 0.01  $\mu\text{m}$  in domain inversion depth and of 0.29  $^{\circ}\text{C}$  in process temperature during the quick heat treatment for domain inversion. This result is much superior to the conventional technique of optical microscopy which is the only way to observe the domain inversion and measure the layer thickness for the etched cross section of domain-inverted LiTaO<sub>3</sub> specimens. It is no doubt that this ultrasonic system is expected to become very useful technology with the advantages of nondestructive and noncontacting measurements and of the excellent sensitivity for development and evaluation of device fabrication processes and systems for domain-inverted layers, as well as for proton-exchanged/annealed layers.

The authors would like to express their sincere gratitude to Dr. K. Yamamoto and Dr. K. Mizuuchi of Matsushita Electric Industry Co., Ltd., for their cooperation in preparing samples. This work was supported in part by a Research Grant-in-Aid from the Ministry of Education, Science, and Culture of Japan and by the Mitsubishi Foundation.



## References

- [1] J. Kushibiki and N. Chubachi: IEEE Trans. Sonics & Ultrason. **32** (1985) 189.
- [2] J. Kushibiki, T. Kobayashi, H. Ishiji, and N. Chubachi: Appl. Phys. Lett. **61** (1992) 2164.
- [3] J. Kushibiki, M. Miyashita, and N. Chubachi: IEEE Photon. Technol. Lett. **8** (1996) 1516.
- [4] K. Nakamura and H. Shimizu: Appl. Phys. Lett. **56** (1990) 1535.
- [5] K. Mizuuchi, K. Yamamoto, and H. Sato: J. Appl. Phys. **75** (1994) 1311.
- [6] M. Miyashita, J. Kushibiki, and N. Chubachi: *Rep. Spring Mtg. Acoust. Soc. Japan* (1995) 955 [in Japanese].
- [7] A. W. Warner, M. Onoe, and G. A. Coquin: J. Acoust. Soc. Am. **42** (1967) 1223.
- [8] K. Nakamura and Ailie Tourlog: IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect. and Freq. Cont. **41** (1994) 872.

## 8. まとめ

本研究は、本代表研究者らが発明・開発した「超音波マイクロスペクトロスコピー（UMS）技術」を光学用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の開発とデバイス作製プロセスの一つであるプロトン交換、分極反転プロセスの問題に適用したものである。研究成果を要約すると以下の通りである。

### 1. UMSシステムの絶対精度と校正法の確立：

GGG(Gadolinium Gallium Garnet)単結晶を標準試料としたシステムの校正法により絶対精度を議論し、高精度測定システムを確立した。漏洩弾性表面波(LSAW)速度の測定において絶対精度 $\pm 0.01\%$ 、相対精度 $\pm 0.001\%$ を達成した。

### 2. 高精度化学組成比分析法の開発：

化学組成比を変化させて（仕込組成48, 49, 50  $\text{Li}_2\text{O}$  mol%） $\text{LiTaO}_3$ 単結晶を引き上げ、UMS技術の基本システムである直線集束ビーム超音波顕微鏡を適用して、LSAW速度とキュリー温度と化学組成比と密度の相互関係を決定し、検量線を決定した。

### 3. 光学用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の評価法の開発：

出発原料を48, 48.5, 49  $\text{Li}_2\text{O}$  mol%とし、直径3インチ長さ50mmのY軸引き上げの単結晶を育成し、両面光学研磨のウェハ試料を作製した。この試料に対してLSAW速度を測定し、キュリー温度、化学組成比、密度、屈折率、c軸格子定数の精密測定値との相互関係、即ち検量線を決定した。

LSAW速度測定による化学組成比分析法と従来法（プラズマ発光分析法、蛍光X線分析法、示差熱分析法）と比較検討し、本超音波法がはるかに高い測定分解能をもつことを明らかにした。

Y軸に引き上げたコングルエント組成の4インチ径光学用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶内の音響的均一性について検討した結果、結晶の長さ方向に沿って徐々に速度が遅くなり、その最大差が0.45m/sであり、これは化学組成の変化+0.015 $\text{Li}_2\text{O}$ -mol%、密度の変化-0.27 $\text{kg/m}^3$ に対応することを明らかにした。

#### 4. プロトン交換層、分極反転層の作製と評価法の開発：

プロトン交換層や分極反転層の構造をもつ試料に対する、漏洩弾性表面波の伝搬特性解析法とプログラムを開発した。

100~300MHzにおいてLSAWの速度の周波数依存性を測定し、上記のような層状構造をもつ試料を評価・解析する手順を確立した。プロトン交換層や分極反転層の深さとLSAW速度との関係を明らかにし、プロセス温度とLSAW速度とを関係づけ、プロセスの条件を定量的に評価する方法について検討した。

以上の研究成果の発表については、内容を整理し、関係学会において発表、および学会誌等に投稿する予定である。

## (7) 研究発表

### (1) 学会誌等

1. J. Kushibiki, M. Miyashita, and N. Chubachi, "Quantitative Characterization of Proton-Exchanged Layers in LiTaO<sub>3</sub> Optoelectronic Devices by Line-Focus-Beam Acoustic Microscopy", IEEE Photonics Tech. Lett., 8(11), 1516-1518(1996).
2. J. Kushibiki and I. Takanaga, "Elastic Properties of Single- and Multi-Domain Crystals of LiTaO<sub>3</sub>", J. Appl. Phys., 81(10), 6906-6910(1997).
3. A. Tourlog, J. D. Achenbach, and J. Kushibiki, "Line-focus acoustic microscopy measurements of acoustic properties of LiTaO<sub>3</sub> crystal plates with an inversion layer", J. Appl. Phys., 81(10), 6616-6621(1997).
4. J. Kushibiki and M. Miyashita, "Characterization of Domain-Inverted Layers in LiTaO<sub>3</sub> by Line-Focus-Beam Acoustic Microscopy", Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 Letters, 36(7B), 959-961(1997).
5. J. Kushibiki and M. Arakawa, "A Method for Calibrationg the Line-Focus-Beam Microscope System", IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq., Contr., 45(2), in press(1998).

### (2) 口頭発表等

#### [国際学会等]

1. M. Miyashita, and J. Kushibiki, "Theoretical and experimental investigation for LFB acoustic microscopy characterization of proton-exchanged LiTaO<sub>3</sub> optical waveguides", 3rd Joint Meeting Acoust. Soc. of Am. and Jpn., Paper No. 4pPA13(1996).

2. I. Takanaga and J. Kushibiki, "Elastic properties of single- and multidomain crystals of  $\text{LiTaO}_3$ ", 3rd Joint Meeting Acoust. Soc. of Am. and Jpn., Paper No. 4pPA14(1996).
3. Mototaka Arakawa and Jun-ichi Kushibiki, "Acoustic Properties of Standard Specimen for Calibration of the Line-Focus-Beam Acoustic Microscopy System", World Congress on Ultrasonics 1997 Proc., 1RP17, 104-105 (1997).
4. Masahito Miyashita and Jun-ichi Kushibiki, "Elastic Properties of Domain-Inverted Layers in  $\text{LiTaO}_3$  Measured by Line-Focus-Beam Acoustic Microscopy", World Congress on Ultrasonics 1997 Proc., 3Rc4, 462-463 (1997).
5. I. Takanaga and J. Kushibiki, "Elastic Properties of Multi-Domain  $\text{LiTaO}_3$  Crystal", 1997 IEEE Ultrason. Symp., Paper No. PK-2(1997).
6. J. Kushibiki, I. Takanaga, and M. Arakawa, "Accurate Measurements of the Acoustical Physical Constants of  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$  Single Crystals", 1997 IEEE Ultrason. Symp., Paper No. Y-5(1997).

[国内学会等]

1. 荒川元孝, 櫛引淳一, "直線集束ビーム超音波顕微鏡システムの校正用標準試料とその音響特性", 応用物理学会 USE95 PF-3, 177-178(1995).
2. 櫛引淳一, 奥澤匡, "直線集束ビーム超音波顕微鏡による光用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の化学組成評価"——化学組成比と漏洩弾性表面波速度および密度の関係——第43回応用物理学会講演予稿集 No. 3, 28p-D-11, 1081 (1996).
3. 宮下雅仁, 櫛引淳一, "直線集束ビーム超音波顕微鏡による $\text{LiTaO}_3$ プロトン交換光導波路の深さとその作製温度の評価法", 信学技報 US96-47, 47-52 (1996).
4. 宮下雅仁, 櫛引淳一, "直線集束ビーム超音波顕微鏡による $\text{LiTaO}_3$ プロトン交換光導波路の深さとその作製温度の評価法", 応用物理学会, USE96 OC-1, 113-114(1996).

5. 荒川元孝, 櫛引淳一, "標準試料を用いた直線集束ビーム超音波顕微鏡システムの校正", 電気学会 計測研究会 IM-96-90, 11-21(1996).
6. 奥澤匡, 櫛引淳一, "直線集束ビーム超音波顕微鏡による光用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の化学組成評価", 第44回応用物理学会講演予稿集 No. 3, 30a-NE-1, 1058 (1997).
7. 宮下雅仁, 櫛引淳一, "直線集束ビーム(LFB)超音波顕微鏡による $\text{LiTaO}_3$ 分極反転層の評価法", 第44回応用物理学会講演予稿集 No. 3, 30a-NE-2, 1058 (1997).
8. 奥澤匡, 櫛引淳一, "直線集束ビーム超音波顕微鏡による光用 $\text{LiTaO}_3$ 単結晶の化学組成評価", 第14回超音波エレクトロニクス研究会, 14-11 (1997).